

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日            2 0 0 3 年   6 月 2 0 日  
Date of Application:

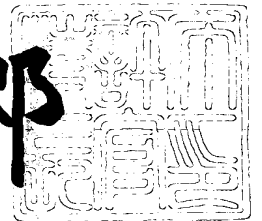
出 願 番 号            特 願 2 0 0 3 - 1 7 6 7 4 7  
Application Number:  
[ST. 10/C] :            [ J P 2 0 0 3 - 1 7 6 7 4 7 ]

出      願      人            ペンタックス株式会社  
Applicant(s):

2 0 0 3 年   7 月   8 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

太田信一郎



出証番号    出証特 2 0 0 3 - 3 0 5 3 5 6 4

【書類名】 特許願

【整理番号】 JP01846

【提出日】 平成15年 6月20日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 A61L 27/12  
C04B 37/00  
C01B 25/32

【発明者】

【住所又は居所】 東京都板橋区前野町 2 丁目 3 6 番 9 号 ペンタックス株式会社内

【氏名】 平出 恒男

【発明者】

【住所又は居所】 東京都板橋区前野町 2 丁目 3 6 番 9 号 ペンタックス株式会社内

【氏名】 久保田 幸雄

【特許出願人】

【識別番号】 000000527

【氏名又は名称】 ペンタックス株式会社

【代理人】

【識別番号】 100080012

【弁理士】

【氏名又は名称】 高石 橘馬

【電話番号】 03(5228)6355

【先の出願に基づく優先権主張】

【出願番号】 特願2002-211690

【出願日】 平成14年 7月19日

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 009324

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 0212684

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 リン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体及びその製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 リン酸カルシウム粒子、予め少なくとも部分的に架橋されている合成樹脂粒子I及び架橋されていない合成樹脂粒子IIの混合物と、金属部材と、リン酸カルシウムブロックとを加圧加熱処理してなるリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体において、前記複合体の表面の少なくとも一部に前記リン酸カルシウム粒子及び／又は前記リン酸カルシウムブロックが露出していることを特徴とするリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体。

【請求項 2】 請求項 1 に記載のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体において、前記合成樹脂粒子I及びIIが、前記金属部材、前記リン酸カルシウム粒子及び前記リン酸カルシウムブロックと接合していることを特徴とするリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体。

【請求項 3】 請求項 1 又は 2 に記載のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体において、前記リン酸カルシウム粒子と、前記合成樹脂粒子I及びIIとからなるリン酸カルシウム－合成樹脂複合層を有し、前記リン酸カルシウム－合成樹脂複合層が前記金属部材の全体を被覆していることを特徴とするリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体。

【請求項 4】 請求項 1 ～ 3 のいずれかに記載のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体において、前記金属部材が純チタン、チタン合金及びステンレススチールからなる群から選ばれた少なくとも一種の金属又は合金からなることを特徴とするリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体。

【請求項 5】 請求項 1 ～ 4 のいずれかに記載のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体において、前記合成樹脂粒子I及びIIが非水溶性のアクリル系樹脂又はポリスチレン樹脂からなることを特徴とするリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体。

【請求項 6】 請求項 1 ～ 5 のいずれかに記載のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体において、前記リン酸カルシウム粒子及び／又は前記リン酸カルシウムブロックが焼成されていることを特徴とするリン酸カルシウム－合成樹脂－金

属複合体。

【請求項7】 請求項1～6のいずれかに記載のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体において、前記リン酸カルシウム粒子及び前記リン酸カルシウムブロックは多孔質であることを特徴とするリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体。

【請求項8】 請求項1～7のいずれかに記載のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体において、前記金属部材の少なくとも一部は0.5 mm以上の厚さを有することを特徴とするリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体。

【請求項9】 請求項1～8のいずれかに記載のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体において、前記合成樹脂粒子IIの含有量が、前記合成樹脂粒子I及びIIの合計量に対して0.2～50質量%であることを特徴とするリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体。

【請求項10】 請求項1～9のいずれかに記載のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体において、前記リン酸カルシウム粒子／前記合成樹脂粒子の重量比が1／9～8／2であることを特徴とするリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体。

【請求項11】 請求項1～10のいずれかに記載のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体において、前記リン酸カルシウム粒子及び前記リン酸カルシウムブロックにおけるカルシウム／リンのモル比が1.4～2.0であることを特徴とするリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体。

【請求項12】 請求項1～11のいずれかに記載のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体において、前記リン酸カルシウム粒子は0.001～10 mmの平均粒径を有することを特徴とするリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体。

【請求項13】 請求項1～12のいずれかに記載のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体において、前記リン酸カルシウムブロックは1 mm以上の厚さを有することを特徴とするリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体。

【請求項14】 リン酸カルシウム粒子、予め少なくとも部分的に架橋されている合成樹脂粒子I及び架橋されていない合成樹脂粒子IIの混合物と、金属部材とを加圧加熱処理してなるリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体において、前記

複合体の表面の少なくとも一部に前記リン酸カルシウム粒子が露出していることを特徴とするリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体。

【請求項15】 請求項14に記載のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体において、前記合成樹脂粒子I及びIIが、前記金属部材及び前記リン酸カルシウム粒子と接合していることを特徴とするリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体。

【請求項16】 請求項14又は15に記載のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体において、前記リン酸カルシウム粒子と、前記合成樹脂粒子I及びIIとからなるリン酸カルシウム－合成樹脂複合層を有し、前記リン酸カルシウム－合成樹脂複合層が前記金属部材の全体を被覆していることを特徴とするリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体。

【請求項17】 請求項14～16のいずれかに記載のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体において、前記金属部材が純チタン、チタン合金及びステンレスチールからなる群から選ばれた少なくとも一種の金属又は合金からなることを特徴とするリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体。

【請求項18】 請求項14～17のいずれかに記載のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体において、前記合成樹脂粒子I及びIIが非水溶性のアクリル系樹脂又はポリスチレン樹脂からなることを特徴とするリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体。

【請求項19】 請求項14～18のいずれかに記載のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体において、前記リン酸カルシウム粒子が焼成されていることを特徴とするリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体。

【請求項20】 請求項14～19のいずれかに記載のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体において、前記リン酸カルシウム粒子は多孔質であることを特徴とするリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体。

【請求項21】 請求項14～20のいずれかに記載のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体において、前記金属部材の少なくとも一部は0.5 mm以上の厚さを有することを特徴とするリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体。

【請求項22】 請求項14～21のいずれかに記載のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体において、前記合成樹脂粒子IIの含有量が、前記合成樹脂粒子I及び

IIの合計量に対して0.2～50質量%であることを特徴とするリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体。

【請求項23】 請求項14～22のいずれかに記載のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体において、前記リン酸カルシウム粒子／前記合成樹脂粒子の重量比が1／9～8／2であることを特徴とするリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体。

【請求項24】 請求項14～23のいずれかに記載のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体において、前記リン酸カルシウム粒子におけるカルシウム／リンのモル比が1.4～2.0であることを特徴とするリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体。

【請求項25】 請求項14～24のいずれかに記載のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体において、前記リン酸カルシウム粒子は0.001～10 mmの平均粒径を有することを特徴とするリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体。

【請求項26】 請求項14～25のいずれかに記載のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体において、前記金属部材が中空であり、前記リン酸カルシウム－合成樹脂複合層が前記金属部材の全体を被覆していることを特徴とするリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体。

【請求項27】 請求項26に記載のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体において、前記金属部材に窓が設けられており、前記窓の位置で前記リン酸カルシウム－合成樹脂複合層が開口していることを特徴とするリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体。

【請求項28】 請求項14～27のいずれかに記載のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体において、前記リン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体はネジの形状を有し、前記金属部材の胴部に前記リン酸カルシウム粒子と、前記合成樹脂粒子I及びIIとからなるリン酸カルシウム－合成樹脂複合層が形成されていることを特徴とするリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体。

【請求項29】 請求項1～28のいずれかに記載のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体を製造する方法において、(a) 前記金属部材と、前記リン酸カルシウム粒子（又は前記リン酸カルシウム粒子及び前記リン酸カルシウムブロック）と

、前記合成樹脂粒子I及びIIとを成型型に充填し、その際前記合成樹脂粒子が前記リン酸カルシウム粒子を包囲するようにし、かつ前記リン酸カルシウムブロックを使用する場合には前記リン酸カルシウムブロックが前記複合体の表面の少なくとも一部に現れるようにし、(b) 前記合成樹脂粒子が前記金属部材及び前記リン酸カルシウム粒子（又は前記リン酸カルシウム粒子及び前記リン酸カルシウムブロック）と接合するように、前記成型型内の充填物を加圧加熱処理することを特徴とする方法。

【請求項30】 請求項29に記載のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体の製造方法において、前記リン酸カルシウム粒子と、前記合成樹脂粒子I及びIIとの混合物が前記金属部材の全体を包囲するように、これらを前記成型型内に充填することを特徴とする方法。

【請求項31】 請求項29又は30に記載のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体の製造方法において、前記リン酸カルシウム粒子及び／又は前記リン酸カルシウムブロックを予め焼成しておくことを特徴とする方法。

【請求項32】 請求項31に記載のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体の製造方法において、前記リン酸カルシウム粒子及び前記リン酸カルシウムブロックの焼成温度が500℃～1300℃であることを特徴とする方法。

【請求項33】 請求項29～32のいずれかに記載のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体の製造方法において、前記加圧加熱処理を真空中又は酸素を含まない雰囲気中で行うことを特徴とする方法。

【請求項34】 請求項29～33のいずれかに記載のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体の製造方法において、中空の金属部材を用い、前記中空の金属部材の中に前記混合物を入れて加圧加熱することにより前記金属部材の中にリン酸カルシウム－合成樹脂複合体が充填した充填複合体とし、前記充填複合体中の前記リン酸カルシウム－合成樹脂複合体の一部を切削することにより前記リン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体を中空にすることを特徴とする方法。

【請求項35】 請求項34に記載のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体の製造方法において、窓を有する金属部材を用い、前記窓の位置で前記リン酸カルシウム－合成樹脂複合体を切削することにより前記リン酸カルシウム－合成樹脂－

金属複合体を開口させることを特徴とする方法。

【請求項36】 請求項29～35のいずれかに記載のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体の製造方法において、ネジ形状を有する金属部材を使用し、前記金属部材のネジ部にキャップを装着した状態で前記成形型のキャビティ内に載置し、前記リン酸カルシウム粒子と前記合成樹脂粒子I及びIIとの混合物を充填し、加圧加熱することにより前記金属部材の周囲にリン酸カルシウム－合成樹脂複合体を形成し、前記キャップを取り外した後、前記金属部材の胴部の周囲における前記リン酸カルシウム－合成樹脂複合体を機械加工することによりネジ山を設けることを特徴とする方法。

【請求項37】 請求項36に記載のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体の製造方法において、垂直方向に貫通するキャビティを有する固定型と、キャップを装着したネジ状の金属部材を受承する形状のキャビティを有するとともに、前記固定型のキャビティ内に下から進入し得る下パンチと、垂直方向に貫通するキャビティと前記キャップを装着したネジ状金属部材の頭部及び前記キャップを受承する形状のキャビティとを有するとともに、前記下パンチと当接する保護型と、前記下パンチのキャビティに相当する位置に前記下パンチのキャビティと同じ形状のキャビティを有するとともに、前記保護型の垂直方向のキャビティ内に上から進入して前記下パンチと当接する上下動可能な上パンチとを具備する成形型を使用することを特徴とする方法。

【請求項38】 請求項37に記載のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体の製造方法において、前記下パンチのキャビティに前記キャップを装着したネジ状の金属部材を載置した後、前記固定型のキャビティ内に前記下パンチを位置させ、前記保護型を下降させて前記保護型のキャビティを前記下パンチのキャビティに当接させ、前記下パンチ及び前記保護型のキャビティ内に前記リン酸カルシウム粒子と前記合成樹脂粒子I及びIIとの混合物を充填し、前記上パンチを下降させて前記混合物を加圧加熱することにより前記金属部材の胴部にリン酸カルシウム－合成樹脂複合体を形成することを特徴とする方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

**【発明の属する技術分野】**

本発明は、優れた加工性及び生体適合性を有し、人口歯根、骨補強材等として利用可能なリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体、及びその製造方法に関する。

**【0002】****【従来の技術及び発明が解決しようとする課題】**

リン酸カルシウムは生体適合性に優れ、人口歯根、骨補強材、歯科用セメント等の生体材料として利用されているが、セラミックスであるために韌性に劣り、耐衝撃性を必要とする部分には使用できない。そのため、人口歯根、骨補強材等はチタンやステンレススチール等、人体為害性のない金属材料により形成されている。しかしながら、生体適合性の観点からはリン酸カルシウム系化合物の方がはるかに優れているため、リン酸カルシウム系化合物、なかでもハイドロキシアパタイトを使用することが望まれている。

**【0003】**

このような事情下で、リン酸カルシウム系化合物をガラス材料、合成樹脂、金属材料と複合化することが試みられており、既に一部は実用化されている。ところがガラス材料と複合化した場合、ガラスが生体内で経時的に溶出するだけでなく、韌性に劣るという問題がある。

**【0004】**

溶融した合成樹脂とリン酸カルシウム粒子とを混練し、複合化する試みも行われているが、混練時にリン酸カルシウム粒子が崩壊しやすく、また複合体を成形加工する際に溶融した合成樹脂が、リン酸カルシウム粒子の表面を覆いやすい欠点がある。さらに切削加工時にバリが生じるといった問題もある。

**【0005】**

このため本出願人は先に、リン酸カルシウム粒子と合成樹脂の架橋粒子とを加圧加熱処理することにより、合成樹脂の架橋粒子同士を接合させることを提案した（特願2001-064032号）。さらに架橋されていない合成樹脂粒子を用い、合成樹脂粒子同士を接合させることにより、水分に対して安定なリン酸カルシウム－合成樹脂複合体を作製することを提案した（特願2001-343489号）。

**【0006】**

リン酸カルシウム－合成樹脂複合体の生体適合性を向上させるため、上記複合体とリン酸カルシウムブロックを複合化させた例がある。しかしながら、この複合体は優れた加工性、生体適合性及び耐水性を有するが、補強材として合成樹脂を用いているため、複合体の耐衝撃性はそれほど高くない。

**【0007】**

リン酸カルシウム系化合物と金属材料との複合材は、一般に金属枠内にリン酸カルシウム系化合物粒子を埋設するか、金属粉体とリン酸カルシウム系化合物粉体との混合物を焼結することにより得られる。しかしながら前者の場合、生体内でリン酸カルシウム系化合物のズレが生じる恐れがある。また後者の場合、複合焼結体の表面に露出しているリン酸カルシウム系化合物粒子が脱落しやすい。

**【0008】****【発明が解決しようとする課題】**

従って本発明の目的は、優れた加工性、生体適合性及び耐水性を有するとともに、衝撃に強いリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体及びその製造方法を提供することである。

**【0009】****【課題を解決するための手段】**

上記目的に鑑み鋭意研究の結果、本発明者らは、リン酸カルシウム粒子（又はリン酸カルシウム粒子及びリン酸カルシウムブロック）と、予め少なくとも部分的に架橋されている合成樹脂粒子Iと、架橋されていない合成樹脂粒子IIとを加圧加熱処理する際に、極めて機械的強度に優れた金属部材を存在させると、優れた加工性、生体適合性、耐水性及び耐衝撃性を有する複合体が得られることを発見し、本発明に想到した。

**【0010】**

すなわち、本発明のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体は、リン酸カルシウム粒子（又はリン酸カルシウム粒子及びリン酸カルシウムブロック）、予め少なくとも部分的に架橋されている合成樹脂粒子I及び架橋されていない合成樹脂粒子IIとの混合物と、金属部材とを加圧加熱処理してなり、前記複合体の表面

の少なくとも一部にリン酸カルシウム粒子（若しくはリン酸カルシウム粒子及び／又は前記リン酸カルシウムブロック）が露出していることを特徴とする。

#### 【0011】

本発明のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体では、加圧加熱処理時に、合成樹脂粒子Iはある程度形状を保ったまま軟化するが、架橋されていない熱可塑性合成樹脂粒子IIは軟化するか溶融する。複合体が多孔質リン酸カルシウムブロックを含有する場合、軟化あるいは溶融した合成樹脂粒子がリン酸カルシウムブロックの細孔に入り込むのが好ましい。合成樹脂粒子が金属部材、リン酸カルシウム粒子（又はリン酸カルシウム粒子及びリン酸カルシウムブロック）に接合することにより、これらは複合体中に強固に固定される。

#### 【0012】

リン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体において、予め少なくとも部分的に架橋した合成樹脂粒子I及び架橋されていない合成樹脂粒子IIは相互に接合しているのが好ましい。加圧加熱処理により、合成樹脂粒子Iはある程度形状を保ったまま軟化して接合し、合成樹脂粒子IIは軟化するか溶融して各粒子間の空隙に入り込み、リン酸カルシウム－合成樹脂複合体となる。各粒子間の空隙を充填する合成樹脂粒子IIはバインダーとして機能する。

#### 【0013】

通常の状態ではリン酸カルシウム粒子は合成樹脂粒子I及びIIによって強固に保持されているのみならず、合成樹脂粒子I及びII同士も強固に接合しているが、切削研磨時にはリン酸カルシウム粒子と合成樹脂粒子との界面並びに合成樹脂粒子I及びII同士の界面でそれぞれ剥離が起こる。従って本発明のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体は極めて加工性に優れている。

#### 【0014】

リン酸カルシウム－合成樹脂複合層は前記金属部材の全体を被覆しているのが好ましい。複合層が前記金属部材の全体を被覆し、金属部材が露出していないリン酸カルシウム－合成樹脂複合体は、特に優れた生体親和性を有する。

#### 【0015】

金属部材は、純チタン、チタン合金及びステンレススチールからなる群から選

ばれた金属又は合金からなるのが好ましい。金属部材の少なくとも一部は0.5 mm以上の厚さを有するのが好ましい。金属部材の好ましい一例はネジ形状を有する。この場合、ネジの胴部にリン酸カルシウム粒子と、合成樹脂粒子I及びIIとからなる複合層を設けるのが好ましい。

#### 【0016】

金属部材の好ましい別の例は網状である。この場合、網の両面をリン酸カルシウム-合成樹脂複合層が被覆しているのが好ましい。網状の金属部材を使用すると、リン酸カルシウム-合成樹脂複合層が金属部材に密着し易い。

#### 【0017】

金属部材の好ましいさらに別の例は中空である。この場合、前記リン酸カルシウム-合成樹脂複合層によって前記金属部材の全面が被覆されており、リン酸カルシウム-合成樹脂-金属複合体も中空となっているのが好ましい。複合体が中空であると、生体内に複合体を入れる際に、複合体の中に骨の材料を入れることができる。また前記金属部材に窓が設けられており、リン酸カルシウム-合成樹脂-金属複合体もその位置に開口部を有するのが好ましい。

#### 【0018】

リン酸カルシウム粒子は生体適合性の観点から多孔質粒子であるのが好ましい。リン酸カルシウム粒子の平均粒径は0.001~10 mmであるのが好ましく、カルシウム／リンのモル比は1.4~2.0であるのが好ましい。またリン酸カルシウム粒子は焼成されているものが好ましい。

#### 【0019】

合成樹脂粒子I及びIIはいずれも非水溶性アクリル系樹脂又はポリスチレン樹脂からなるのが好ましく、ポリメチルメタクリレートからなるのが特に好ましい。架橋されていない合成樹脂粒子IIの含有量は、合成樹脂粒子I及びIIの合計量に対して0.2~50質量%であるのが好ましい。

#### 【0020】

リン酸カルシウム-合成樹脂複合層において、リン酸カルシウム粒子／合成樹脂粒子の重量比は1／9~8／2であるのが好ましい。

#### 【0021】

リン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体がリン酸カルシウムブロックを含有する場合、リン酸カルシウムブロックは生体適合性の観点から多孔質であるのが好ましい。リン酸カルシウムブロックのカルシウム／リンのモル比は1.4～2.0であるのが好ましい。また実用上、リン酸カルシウムブロックは少なくとも1mm以上の厚さを有するものが好ましく、焼成されているものが好ましい。

#### 【0022】

本発明のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体の製造方法は、(a) 前記金属部材と、前記リン酸カルシウム粒子（又は前記リン酸カルシウム粒子及び前記リン酸カルシウムブロック）と前記合成樹脂粒子I及びIIとの混合物とを成型型に充填し、その際前記合成樹脂粒子が前記リン酸カルシウム粒子を包囲するようにし、かつ前記リン酸カルシウムブロックを使用する場合には前記リン酸カルシウムブロックが前記複合体の表面の少なくとも一部に現れるようにし、(b) 前記合成樹脂粒子が、前記金属部材及び前記リン酸カルシウム粒子（又は前記リン酸カルシウム粒子及び前記リン酸カルシウムブロック）と接合するように、前記成型型内の充填物を加圧加熱処理することを特徴とする。

#### 【0023】

前記リン酸カルシウム粒子（又は前記リン酸カルシウム粒子及び／又は前記リン酸カルシウムブロック）は焼成しておくのが好ましい。焼成温度は500℃～1300℃とするのが好ましい。

#### 【0024】

前記加圧加熱処理は真空中又は酸素を含まない雰囲気中で行うのが好ましい。

#### 【0025】

本発明の好ましい実施例によるリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体の製造方法は、中空の金属部材を用い、前記金属部材の中にリン酸カルシウムと合成樹脂I及びIIとの混合物を入れて加圧加熱することにより前記金属部材の中にリン酸カルシウム－合成樹脂複合体が充填した充填複合体とし、前記充填複合体の前記リン酸カルシウム－合成樹脂複合体の一部を切削することにより前記リン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体を中空にする。

#### 【0026】

上記方法の好ましい一実施態様では、中空でかつ窓を有する金属部材を用い、機械加工により前記リン酸カルシウム－合成樹脂複合体を前記窓の位置で切削することにより開口させ、中空で窓を有するリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体を形成する。

#### 【0027】

本発明の好ましい別の実施例によるネジ形状を有するリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体の製造方法は、ネジ形状を有する金属部材を使用し、そのネジ部にキャップを装着した状態で成形型のキャビティ内に載置し、リン酸カルシウム粒子と合成樹脂粒子I及びIIとの混合物を充填し、加圧加熱することにより前記金属部材の周囲にリン酸カルシウム－合成樹脂複合体を形成し、キャップを取り外した後、金属部材の胴部の周囲におけるリン酸カルシウム－合成樹脂複合体を機械加工することによりネジ山を設けることを特徴とする。

#### 【0028】

上記方法の好ましい一実施態様では、垂直方向に貫通するキャビティを有する固定型と、キャップを装着したネジ状の金属部材を受承する形状のキャビティを有するとともに、前記固定型のキャビティ内に下から進入し得る下パンチと、垂直方向に貫通するキャビティとキャップを装着したネジ状金属部材の頭部及び前記キャップを受承する形状のキャビティとを有するとともに、前記下パンチと当接する保護型と、前記下パンチのキャビティに相当する位置に下パンチのキャビティと同じ形状のキャビティを有するとともに、保護型の垂直方向のキャビティ内に上から進入して前記下パンチと当接する上下動可能な上パンチとを具備する成形型を使用する。

#### 【0029】

前記下パンチのキャビティにキャップを装着したネジ状の金属部材を載置した後、固定型のキャビティ内に下パンチを位置させ、保護型を下降させて保護型のキャビティを前記下パンチのキャビティに当接させ、下パンチ及び保護型のキャビティ内にリン酸カルシウム粒子と合成樹脂粒子I及びIIとの混合物を充填し、上パンチを下降させて混合物を加圧加熱することにより、前記金属部材の胴部にリン酸カルシウム－合成樹脂複合体を形成するのが好ましい。

**【 0 0 3 0 】****【発明の実施の形態】****[1] リン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体**

リン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体は、金属部材と、リン酸カルシウム粒子（又はリン酸カルシウム粒子及びリン酸カルシウムブロック）と、予め少なくとも部分的に架橋されている合成樹脂粒子Iと、架橋されていない合成樹脂粒子IIとからなる。

**【 0 0 3 1 】****(1) 金属部材**

金属部材は、複合体中で補強材として働くための十分な強度を有し、人体為害性のないものであれば限定なく、一般的な材料を用いることができる。好ましくは、純チタン、チタン合金及びステンレススチールからなる群から選ばれた少なくとも一種の金属又は合金である。

**【 0 0 3 2 】**

金属部材の形状は柱状、筒状、ねじ状、網状又は板状であるのが好ましい。円柱状の金属部材の外径はリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体の外径と同じか、それより1～5 mm程度小さいのが好ましい。高さはリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体の高さより小さければ特に制限されないが、0.5 mm～100 mm程度であるのが好ましい。ねじ状の金属部材の場合、ねじ胴部の外径は1～10 mmであるのが好ましい。筒状の金属部材の場合、金属部材の厚さは、0.5 mm～20 mmであるのが好ましい。金属部材の厚さが0.5 mm未満であると、複合体中で補強材として働くための十分な強度が得られず、また20 mm超であると、複合体の加工性及び生体適合性が低すぎる。

**【 0 0 3 3 】**

網状の金属部材の線径は、3 mm以下であるのが好ましい。メッシュ数は特に制限されず、目の細かい網でも荒い網でも良い。合成樹脂との密着力を向上させるため、加圧加熱処理前に予め金属部材の表面にアンカリング等の加工をしてもよい。板状の金属部材の場合、厚さは0.5～5 mm程度が好ましい。また金属部材の平面方向に垂直な複数の貫通孔が設けられているのが好ましい。貫通孔が設けら

れていると、金属部材の全体がリン酸カルシウム-合成樹脂複合層によって被覆されている場合に、板状金属部材の両側にあるリン酸カルシウム-合成樹脂複合層が貫通孔を介して接合することができる。貫通孔は一定の間隔で設けられているのが好ましい。金属部材の面積に占める貫通孔の面積の割合は、5～90%とするのが好ましい。貫通孔の面積が5%以下であると、リン酸カルシウム-合成樹脂複合層同士の接合面積が小さ過ぎて金属部材から剥がれ易過ぎ、90%以上であると金属部材の補強材としての強度が十分に得られない。

#### 【0034】

図12は金属部材の好ましい一例を示す。この金属部材200は断面長方形の筒状あり、一对の側壁に窓221を有している。窓221は側壁一面につき2つずつ設けられている。金属部材は(a) 中空であって、(b) 上端222及び下端223の少なくとも一方が開放しており、(c) 窓を有するのが好ましい。具体的には断面が円形、小判形、四角形等の筒状の物が好ましい。中空で開口した金属部材を用いると、中空で開口したリン酸カルシウム-合成樹脂-金属複合体を作製できる。リン酸カルシウム-合成樹脂-金属複合体が中空で開口していると、生体内に入れたときに、骨芽細胞や体液が中空の部分に侵入し易いので、複合体の周りに骨が再生し易い。

#### 【0035】

金属部材に設けられる窓の数は特に限定されないが、断面長方形の筒状のリン酸カルシウム-合成樹脂-金属複合体の場合、実用的には一面あたり0～5程度であり、好ましくは1～4程度である。各側壁の面積に占める窓221の合計面積の割合は、80%以下とするのが好ましい。窓221の面積の割合が80%以上であると、複合体の補強材として十分な強度が得られない。

#### 【0036】

##### (2) リン酸カルシウム粒子

リン酸カルシウム粒子のカルシウム／リンのモル比は1.4～2.0とするのが好ましい。リン酸カルシウム粒子の具体例としては、ハイドロキシアパタイト、フッ素アパタイト等のアパタイト類、リン酸三カルシウム、リン酸四カルシウム及びこれらの混合粉体が挙げられる。

## 【 0 0 3 7 】

リン酸カルシウム粒子は多孔質粒子でも緻密粒子でも良いが、多孔質の方が好ましい。多孔質粒子の場合、気孔率は20～70%であるのが好ましい。多孔質粒子の細孔は大小様々であるが、10～2000 $\mu$ mの径を有するのが好ましい。

## 【 0 0 3 8 】

リン酸カルシウム粒子は、平均粒径が0.001～10 mmとなるように粒度調整するのが好ましい。リン酸カルシウム粒子のより好ましい平均粒径は0.01～6 mmである。リン酸カルシウム粒子の平均粒径が10 mm超であると、使用時にリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体からリン酸カルシウム粒子が脱落しやすいので好ましくない。また0.001 mm未満であると、凝集しやすく分散性が悪い上にコストが高い。

## 【 0 0 3 9 】

リン酸カルシウム粒子は、加圧加熱処理前に焼成するのが好ましい。焼成温度は500～1300℃が好ましく、700～1200℃がより好ましい。焼成温度が500℃より低いと、加圧加熱処理中にリン酸カルシウム粒子が崩壊しやすい。特に多孔質のリン酸カルシウム粒子の場合、加圧により変形し、気孔がつぶれて気孔性が失われる。また仮焼結温度が1300℃より高いと、リン酸カルシウム系化合物の分解又は劣化が起こるので好ましくない。

## 【 0 0 4 0 】

焼成時間(上記焼成温度を保持する時間)は、1～10時間とするのが好ましい。焼成時間が1時間未満であると焼成によるリン酸カルシウム粒子の補強効果が十分に得られない。また10時間を超えて処理しても効果に変化が見られず、コスト高となるだけである。より好ましい焼成時間は2～5時間である。焼成雰囲気は特に限定されないが、リン酸カルシウム粒子の分解を防止するために、大気中で行うのが好ましい。

## 【 0 0 4 1 】

## (3) 合成樹脂粒子

合成樹脂粒子は、予め少なくとも部分的に架橋した合成樹脂粒子I及び架橋されていない合成樹脂粒子IIからなる。予め少なくとも部分的に架橋した合成樹脂

粒子I及び架橋されていない合成樹脂粒子IIとしては、人体為害性のないものであれば限定的でなく、一般的な材料を用いることができる。合成樹脂粒子I及びIIは好ましくは非水溶性のアクリル系樹脂、ポリスチレン樹脂等からなり、特に好ましくは、ポリメチルメタクリレートからなる。合成樹脂粒子I及びIIは同じ材料を用いてもよいし、異なる材料を用いてもよい。

#### 【0042】

合成樹脂粒子I及びIIの平均粒径はいずれも $0.05\sim 500\mu\text{m}$ であるのが好ましく、 $0.1\sim 100\mu\text{m}$ であるのがより好ましい。また合成樹脂粒子の平均粒径は、リン酸カルシウム粒子の平均粒径より小さいのが好ましい。

#### 【0043】

合成樹脂粒子IIの含有量は、合成樹脂粒子I及びIIの合計量に対して $0.2\sim 50$ 質量%であるのが好ましい。合成樹脂粒子IIの含有量が $0.2\%$ 未満の場合、複合体は水分に対する十分な安定性を得ることができない。また含有量が $50$ 質量%超の場合、加圧加熱処理する工程で多孔性のリン酸カルシウム粒子内に合成樹脂粒子IIが侵入する恐れがあるのみならず、複合体の加工性も低い。

#### 【0044】

##### (4) リン酸カルシウムブロック

本発明のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体としては、リン酸カルシウムブロックを含有するものと、含有しないものがある。リン酸カルシウムブロックを含有する場合、その組成はリン酸カルシウム粒子と同じであるのが好ましい。

#### 【0045】

リン酸カルシウムブロックは多孔質であっても緻密質であってもよいが、多孔質の方が好ましい。多孔質の場合、気孔率は $5\sim 90\%$ であるのが好ましい。リン酸カルシウムブロックの細孔は大小様々であるが、 $20\sim 2000\mu\text{m}$ の径を有するのが好ましい。

#### 【0046】

リン酸カルシウムブロックの形状は特に限定されず、角柱形状や円柱形状等とすることができる。リン酸カルシウムブロックの厚さはリン酸カルシウム－合成

樹脂－金属複合体より薄ければ特に限定されないが、実用上の観点から、1mm以上であるのが好ましい。

#### 【0047】

##### (5) リン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体の構造

本発明のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体は、リン酸カルシウム粒子（又はリン酸カルシウム粒子及びリン酸カルシウムブロック）が表面の少なくとも一部に露出している。

#### 【0048】

図1～11及び図13～15は本発明の各実施例によるリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体を示すが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。リン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体の形状は特に限定されず、例えば角柱形状、円柱形状、板状、筒状、ねじ状、又はこれらを組み合わせたものとしてすることができる。図1～9はリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体が円柱形状である例を示し、図10及び11はリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体が板状である例を示し、図13及び図14はリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体が筒状である例を示し、図15はリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体がネジ状である例を示す。

#### 【0049】

図1～6はリン酸カルシウムブロックを含有するリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体の例を示し、図7～11及び図13～15はリン酸カルシウムブロックを含有していないリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体の例を示す。

#### 【0050】

図1(a)はリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体の上面を示し、(b)は側面を示す。図1に示すリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体は、リン酸カルシウムブロック300からなる上層と、上層に密着しリン酸カルシウム粒子100及び合成樹脂粒子の混合物からなる中間層（リン酸カルシウム－合成樹脂複合層3a）と、中間層に密着し金属部材200からなる下層とからなる三層構造を有する。リン酸カルシウム－合成樹脂複合層3a中の合成樹脂粒子は、予め少なくとも部分的に架橋されている合成樹脂粒子I及び架橋されていない合成樹脂粒子IIからなる

。架橋合成樹脂粒子I及び架橋されていない合成樹脂粒子IIはリン酸カルシウム粒子100を取り囲み、密着している。リン酸カルシウム－合成樹脂複合層3aの表面には、リン酸カルシウム粒子100が露出している。

#### 【0051】

図2～9において、(a)はリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体の上面を示し、(b)はその中央縦断面を示す。図2に示すリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体は、円筒状のリン酸カルシウムブロック300と、それに内接するリン酸カルシウム－合成樹脂複合層3aと、リン酸カルシウム－合成樹脂複合層3aに内接する円柱状の金属部材200からなる三層構造を有する。リン酸カルシウム－合成樹脂複合層3aは図1に示す実施例と同じである。

#### 【0052】

図3～5は、円筒状の金属部材200により外側面が取り囲まれた構造を有するリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体の例を示す。図3(a)及び(b)に示すリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体は、金属部材200からなる外層と、それに内接するリン酸カルシウム－合成樹脂複合層3aと、リン酸カルシウム－合成樹脂複合層3aの中心に複合体の上面と下面とに露出するように設けられた2つのリン酸カルシウムブロック300、300とからなる構造を有する。リン酸カルシウム－合成樹脂複合層3aは図1に示す実施例と同じである。

#### 【0053】

図4(a)及び(b)に示すリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体は、リン酸カルシウム－合成樹脂複合層3aの中に設けられた円柱状の2つのリン酸カルシウムブロック300、300の間に、金属部材200からなる仕切り部を有する以外、図3に示す実施例と同じである。

#### 【0054】

図5(a)及び(b)に示すリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体は、金属部材200からなる外層と、リン酸カルシウム粒子100及び合成樹脂粒子の混合物、並びにリン酸カルシウムブロック300からなる内層とからなる構造を有する。内層は、上下層にリン酸カルシウムブロック300、300と、その間のリン酸カルシウム－合成樹脂複合層3aとからなるサンドウィッチ構造を有する。リン酸カルシウム－

合成樹脂複合層3aは図1に示す実施例と同じである。

【0055】

図6(a)及び(b)に示すリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体は、円筒状のリン酸カルシウムブロック300（外層）と、リン酸カルシウムブロック300に内接するリン酸カルシウム－合成樹脂複合層3a（中間層）と、リン酸カルシウム－合成樹脂複合層3aに内接する円柱状の金属部材200（内層）からなる。リン酸カルシウム－合成樹脂複合層3aは金属部材200の上端及び下端も被覆している。リン酸カルシウム－合成樹脂複合層3aは図1に示す実施例と同じである。

【0056】

図7(a)及び(b)に示すリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体はリン酸カルシウム－合成樹脂複合層3aと、リン酸カルシウム－合成樹脂複合層3aの下面に密着する金属部材200からなる層とからなる二層構造を有する。リン酸カルシウム－合成樹脂複合層3aは図1に示す実施例と同じである。

【0057】

図8(a)及び(b)に示すリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体は、円筒状のリン酸カルシウム－合成樹脂複合層3a（外層）と、リン酸カルシウム－合成樹脂複合層3aの内面に密着する円柱状の金属部材200（内層）とからなる二層構造を有する。リン酸カルシウム－合成樹脂複合層3aは図1に示す実施例と同じである。

【0058】

図9(a)及び(b)に示すリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体は、円筒状の金属部材200からなる外層と、金属部材200の内面に密着するリン酸カルシウム－合成樹脂複合層3a（内層）とからなる二層構造を有する。リン酸カルシウム－合成樹脂複合層3aは図1に示す実施例と同じである。

【0059】

図10(a)及び(b)に示すリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体は板状であり、網状の金属部材200と、金属部材200を被覆するリン酸カルシウム－合成樹脂複合層3aとを具備する。リン酸カルシウム－合成樹脂複合層3aは網状金属部材200の全面を被覆している。リン酸カルシウム－合成樹脂複合層3aは図1に示す実施

例と同じである。

#### 【0 0 6 0】

図11(a)及び(b)に示すリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体は、板状の金属部材200と、金属部材200を被覆するリン酸カルシウム－合成樹脂複合層3aとを具備する。リン酸カルシウム－合成樹脂複合層3aは板状金属部材200の全面を被覆している。金属部材200は複数の貫通孔230を有しており、貫通孔230は一定の間隔で並んでいる。図11(b)に示すように、リン酸カルシウム－合成樹脂複合層3aは貫通孔230内に充填しており、金属部材200の両側のリン酸カルシウム－合成樹脂複合層3aが接合した状態となっている。このためリン酸カルシウム－合成樹脂複合層3aは、金属部材200から剥がれ難い。リン酸カルシウム－合成樹脂複合層3aは図1に示す実施例と同じである。

#### 【0 0 6 1】

図13及び図14は、リン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体のさらに別の例を示す。この複合体は断面長方形の筒状であり、図9に示す金属部材200と、金属部材200の表面全体を被覆するリン酸カルシウム－合成樹脂複合層3aとを具備する。

#### 【0 0 6 2】

図14(a)はリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体の側面を示し、(b)はそのA-A断面を示し、(c)はそのB-B断面を示す。リン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体は金属部材200の窓221の位置に開口部31を有している。図14(b)に示すように、金属部材200の内面、外面及び窓221の端面がリン酸カルシウム－合成樹脂複合層3aによって被覆されている。また図14(c)に示すように、金属部材200の上端222及び下端223もリン酸カルシウム－合成樹脂複合層3aによって被覆されているので、金属部材200は全く露出していない。

#### 【0 0 6 3】

図15(a)はネジ状の複合体の側面を示し、(b)はその縦断面を示す。このリン酸カルシウム－合成樹脂－金属のネジ状複合体は、実質的に円錐形状のネジ部201と、ネジ部201より外径が小さい胴部202と、ネジ部201より外径が大きい円形頭部203とからなる金属製ネジ200と、胴部202を被覆するリン酸カルシウム－合成

樹脂複合層3aとからなる。ネジ部201及び混合層3aはネジ加工されている。胴部202の表面は合成樹脂粒子I及びIIとの密着力を向上させるため凹凸加工されているのが好ましい。また頭部203にはネジ状複合体を回転させるためのプラス又はマイナス溝203aが設けられている。リン酸カルシウム－合成樹脂複合層3aは図1の例と同様に、リン酸カルシウム粒子100と合成樹脂粒子I及びIIとの均一な混合物からなる。リン酸カルシウム－合成樹脂複合層3aの表面には、リン酸カルシウム粒子100が露出している。

#### 【0064】

### [2] リン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体の製造方法

#### (1) 第一の実施例

本発明は、リン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体を製造するのに加圧加熱法を利用する。リン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体としては、リン酸カルシウムブロックを含有するものと含有しないものがある。リン酸カルシウムブロックを含有する複合体の製造方法の実施例を主として以下に説明するが、リン酸カルシウムブロックを含有しない複合体も同様な加圧加熱法により得ることができる。

#### 【0065】

#### (a) リン酸カルシウムブロックの製造

リン酸カルシウムブロックは一般的な方法により製造できるが、特開平2-167868号及び特開平8-48583号に記載の方法や、発泡法、熱分解性ビーズを添加する方法等に基づいて製造するのが好ましい。特開平2-167868号に記載のリン酸カルシウムブロックの製造方法は、(I)リン酸カルシウム系化合物粉体と高分子物質とを含むスラリー又は流動性ゲルを発泡させた後増粘又はゲル化し、得られた発泡成形体を必要に応じて仮焼結する方法であり、特開平8-48583号に記載のリン酸カルシウムブロックの製造方法は、(II)多糖類粒子をセラミックス粉体と混合した後で圧粉体に成形し、得られた圧粉体を焼成する方法である。

#### 【0066】

#### (b) リン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体の製造

#### (I) 加圧加熱処理装置

リン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体を製造するのに好ましい加圧加熱法としては、熱源に接続した一对の型の間に金属部材と、リン酸カルシウム粒子と、合成樹脂粒子I及びIIとからなる混合物と、リン酸カルシウムブロックとを充填し、加圧しながら加熱する方法が挙げられる。加圧加熱は真空中、又はN<sub>2</sub>やHe、Ar等の不活性ガス雰囲気中で行うのが好ましい。

#### 【 0 0 6 7 】

図16～18は、真空又は不活性ガス雰囲気中で加圧加熱処理を行う装置の一例を示す。図16において、加圧加熱装置 1 は、真空ポンプ 7 が設けられた真空チャンバ 6 と、その中に配置された固定型 2 と、固定型 2 内のキャビティ 2a に加えられた金属部材と、リン酸カルシウム粒子と、合成樹脂粒子I及びIIとからなる混合物 3 と、リン酸カルシウムブロックとを加圧及び加熱する一对のパンチ 4a, 4b と、各パンチ 4a, 4b を駆動するラム 5a, 5b とを有する。固定型 2 内には、処理温度を測定するための熱電対（図示せず）が設けられている。またガスポンプ 11 にはガス導入口及びガスボンベ（図示せず）が設けられている。

#### 【 0 0 6 8 】

各ラム 5a, 5b は、加圧駆動機構 9 により駆動されて混合物 3 を加圧するとともに、給電端子（図示せず）を介して接続した電源 8 から電力の供給を受け、パンチ 4a, 4b を加熱する。制御部 10 は加圧駆動機構 9、電源 8、真空ポンプ 7 及び熱電対に接続しており、固定型 2 内の加圧力及び加熱温度、真空チャンパー 6 内の真空度等を制御する。

#### 【 0 0 6 9 】

図17に示すように、固定型 2 は環状構造を有し、断面が円形、小判形、長方形等のキャビティ 2a を有する。各パンチ 4a, 4b は固定型 2 のキャビティ 2a 内を上下動するように、キャビティ 2a より僅かに小さい断面を有する。各パンチ 4a, 4b はラム 5a, 5b に固定されている。

#### 【 0 0 7 0 】

##### (II) 充填

リン酸カルシウム粒子及びリン酸カルシウムブロックが複合体の表面の少なくとも一部に露出し、合成樹脂粒子I及びIIがリン酸カルシウム粒子を取り囲むよ

うに、金属部材と、リン酸カルシウム粒子と、合成樹脂粒子I及びIIとからなる混合物と、リン酸カルシウムブロックとを固定型2のキャビティ2aに充填する。

#### 【0071】

リン酸カルシウム粒子／合成樹脂粒子の重量比は1／9～8／2であるのが好ましい。リン酸カルシウム粒子／合成樹脂粒子の重量比が8／2超であると、リン酸カルシウム粒子の周囲が合成樹脂粒子で満たされず、リン酸カルシウム粒子が脱落しやすい。一方1／9未満であると、リン酸カルシウムの割合が低過ぎ、生体適合性が低下し過ぎるので好ましくない。

#### 【0072】

図10に示すリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体、又は図11に示すリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体を製造する場合、図19(a)に示すように、リン酸カルシウム粒子と、合成樹脂粒子I及びIIとからなる混合物3をキャビティ2aに入れ、混合物3の高さが5～10 mm程度になった後で、網状又は板状の金属部材200を入れる。金属部材200の上にさらに混合物3を入れ、図19(b)に示すように、混合物3が金属部材200の上に高さ5～10 mm程度入った状態にする。混合物3は、金属部材200の網目又は貫通孔230内にも入る。

#### 【0073】

##### (III) 加圧加熱処理

図16、図18及び図19(b)に示すように、金属部材200、混合物3及びリン酸カルシウムブロック300を順にキャビティ2aに充填した後、真空チャンバ6を密閉して真空ポンプ7により脱気し、1 Pa程度の真空度に保つ。その後N<sub>2</sub>やHe、Ar等の不活性ガスを導入してもよい。この処理で脱酸素（低濃度）状態にすることにより、合成樹脂の酸化分解を防止できる。

#### 【0074】

制御部10により加圧駆動機構9が作動すると、ラム5a、5bの少なくとも一方が互いに近接する方向に移動し、これらに固定されたパンチ4a、4bは混合物3を加圧する。パンチ4a、4bによる加圧力は0.5～50 MPaとするのが好ましく、1.0～20 MPaとするのがより好ましい。加圧力が0.5 MPaより小さいと、合成樹脂粒子が金属部材、リン酸カルシウム粒子及びリン酸カルシウムブロックと十分に密着で

さず、これらが複合体から脱落しやすくなる。また50 MPaより大きくしてもそれに見合う形態保持性の向上が得られず、かえってリン酸カルシウム粒子及びリン酸カルシウムブロックが崩壊する等の問題が生じるだけである。

#### 【0075】

電源8によってパンチ4a, 4bを加熱することにより、混合物3は加圧下で加熱される。混合物3の加熱は、予め設定した昇温プログラムに従って行うのがよい。その場合、固定型2に設けられた熱電対（図示せず）により混合物3の温度を検出し、熱電対の出力を制御部10に入力する。制御部10は入力した温度データに基づき昇温プログラム通りに昇温するための信号を作成し、それを電源8に出力する。電源8は制御部10からの命令に従い、適当な電流をラム5a, 5bに供給する。

#### 【0076】

加熱温度は、130～300℃とするのが好ましく、150～250℃とするのがより好ましい。加熱温度が130℃未満であると、合成樹脂粒子が金属部材、リン酸カルシウム粒子及びリン酸カルシウムブロックと十分に密着できず、これらが複合体から脱落しやすい。また加熱温度が300℃超であると合成樹脂粒子が粒子形状を保てず、熔融して一体化してしまう場合があるので好ましくない。

#### 【0077】

加熱時間（加熱温度を保持する時間）は1～30分間とするのが好ましい。加熱時間が1分より短いと合成樹脂粒子が金属部材、リン酸カルシウム粒子及びリン酸カルシウムブロックと十分に密着できなくなり、また30分より長くしても密着力は向上しないので好ましくない。より好ましい加熱時間は3～10分間である。

#### 【0078】

加圧加熱処理終了後のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体を室温まで放冷し、成型型から取り出す。複合体の表面にリン酸カルシウム粒子が十分露出していない場合は、表面を研削してもよい。

#### 【0079】

### (2) 第二の実施例

図13及び図14に示す筒状のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体の製造方

法は、リン酸カルシウム粒子、合成樹脂粒子I及びIIとの混合物と金属部材との固定型2のキャビティ2aへの充填以外、第一の実施例と同じであるので、相違点のみ以下に説明する。

#### 【0080】

図20(a)に示すように、固定型2内のキャビティ2aの底に一面にリン酸カルシウム粒子と、合成樹脂粒子I及びIIとからなる混合物3を入れ、混合物3の高さが5～10 mm程度になった後で金属部材200を入れ、金属部材200の内側と外側に、さらに混合物3を入れる。金属部材200の外側にも混合物3を充填するために、キャビティ2aの内径は金属部材200の外径より3～10 mm程度大きくしてある。

#### 【0081】

図20(b)に示すように、金属部材200の上に混合物3を高さ5～10 mm程度入れた状態で、キャビティ2a内を加圧加熱する。加圧加熱処理により、図21及び図22に示すように、リン酸カルシウムと、合成樹脂複合層との複合体が金属部材200の外側全体を被覆し、金属部材200の内側にもリン酸カルシウム－合成樹脂複合体が充填した充填複合体400が得られる。充填複合体400は、室温まで放冷した後で成型型から取り出す。

#### 【0082】

図22は充填複合体400を示し、(a)はその側面図であり、(b)はそのC-C断面図であり、(c)はそのD-D断面図である。金属部材200の内部にあるリン酸カルシウム－合成樹脂複合体を切削することによりこの充填複合体を筒状にするとともに、金属部材200の窓の位置でリン酸カルシウム－合成樹脂複合体を削り、開口部31を設ける。図22(b)及び(c)に、リン酸カルシウム－合成樹脂複合層3aを破線で示す。筒状金属部材200の内側と外側及び上端222と下端223に、リン酸カルシウム－合成樹脂複合層3aが厚さd0.5～2 mmで残るように、リン酸カルシウム－合成樹脂複合体を切削するのが好ましい。

#### 【0083】

### (3) 第三の実施例

図15に示すネジ状複合体は特殊な形状を有するので、例えば以下の通り製造する。成形時にネジ部201を保護するために、図23に示すように、ネジ部201に相補

的なネジ穴を有する円筒状の金属製キャップ210を装着する。金属製キャップ210の開口面210aがネジ部201の底面201aと実質的に同一平面となるように、キャップ210のネジ穴を設定する。キャップ210は成形後に金属製ネジ200から取り外すので、脱離し易いように表面及びネジ穴にシリコン等の離型剤を塗布しておくのが好ましい。

#### 【0084】

図24及び図25は、図15に示すネジ状複合体を作製するための加圧加熱装置（成形装置）の一例を示し、図24は開放状態における成形型の縦断面を示し、図25はそのE-E断面を示す。この成形装置は、垂直方向に貫通する断面長方形のキャビティ2aを有する固定型2と、固定型2のキャビティ2a内に下から進入する下パンチ4bと、固定型2のキャビティ2a内に上から進入して下パンチ4bと当接する保護型12と、保護型12のキャビティ12a内に上から進入して下パンチ4bと当接する上パンチ4aとを有する。各パンチ4a、4bには駆動ラム5a、5bが設けられている。

#### 【0085】

下パンチ4bの上面には、金属製ネジ200を載置するための半円筒状のキャビティ14bが設けられており、半円筒状キャビティ14bの長手方向一端は開放されているが、他端は閉じている。また半円筒状キャビティ14bは固定型2のキャビティ2a内に露出するように位置決めされている。上パンチ4aは、下パンチ4bの半円筒状キャビティ14bに相当する位置に半円筒状キャビティ14bと同じ半円筒状のキャビティ14aを有し、両半円筒状キャビティ14a、14bはそれぞれキャップ210及びネジ頭部203にほぼ相補的な形状を有する。

#### 【0086】

図26は保護型12を示し、(a)は保護型12の上面図であり、(b)はそのF-F断面図であり、(c)はそのG-G断面図であり、(d)はそのH-H断面図であり、(e)はそのJ-J断面図である。保護型12は、固定型2のキャビティ2aに精確に収容されるサイズの長形状を有する。また保護型12は、図26(a)に示すように、上パンチ4aの外形に等しい長形状を有する垂直方向に貫通したキャビティ12aと、図26(b)～(e)に示すように、キャビティ12aの長手方向に延在する半円筒状キャビティ12b、12cとを有する。各半円筒状キャビティ12b、12cはキャップ210を装着した金属製

ネジ200と相補的な形状を有する。半円筒状キャビティ12b及び半円筒状キャビティ12cは長手方向に整列した位置関係にあり、下パンチ4bの半円筒状キャビティ14bと協同して、金属製ネジ200を精確に位置決めして収容するようになっている。また半円筒状キャビティ12cはちょうどネジ頭部203を受承する長さ（ネジ頭部203の厚さに等しい長さ）を有し、金属製ネジ200を載置した際にネジ頭部203の保護部として機能する。

#### 【0087】

このような構造を有する図24～26に示す成形装置を使用して図15に示すネジ状の複合体を成形する例を以下に示す。まず図27に示すように、下パンチ4bの半円筒状キャビティ14bにキャップ210を装着した金属製ネジ本体200を載置した状態で下パンチ4bを上昇させ、固定型2のキャビティ2a内の中央付近に固定する。この状態で保護型12を下降させて、保護型12の半円筒状キャビティ12b、12cを下パンチ4bの半円筒状キャビティ14bに当接させ、得られた円筒状キャビティによりそれぞれネジのキャップ210及び頭部203を固定する。

#### 【0088】

この状態で下パンチ4bのキャビティ14b及び保護型12のキャビティ12a内にリン酸カルシウム粒子及び合成樹脂粒子I及びIIの混合物3を充填する。次いで図28(a)に示すように、加熱状態で上パンチ4aを保護型12のキャビティ12a内に圧下すると、混合物3は緻密化し、生成したリン酸カルシウム－合成樹脂複合体はネジの金属部材（金属製ネジ本体）200に密着する。図28(b)は成形が完了した状態を示す。

#### 【0089】

成形が完了した後、図29に示すように、上下パンチ4a、4bを固定型2の外へ移動し、保護型12を取り外し、リン酸カルシウム－合成樹脂複合層3aが密着した金属製ネジ本体200を下パンチ4bから取り出す。図30に示すように、リン酸カルシウム－合成樹脂複合層3aはネジ胴部202上に付着しており、キャップ210及び頭部203には付着していない。そのため、キャップ210は回転により容易に脱着することができる。脱離したキャップ210は、離型剤を塗布し、次の成形に再利用する。

## 【0090】

図31に示すように、頭部203を把持して、胴部202の周囲におけるリン酸カルシウム－合成樹脂複合体を切削によりネジ加工し、ねじ形状のリン酸カルシウム－合成樹脂複合層を設ける。このとき、リン酸カルシウム－合成樹脂複合体の切削領域は、切削誤差を吸収するために、頭部203より僅かに内側に限定する。これにより、頭部203の内面に僅かにリン酸カルシウム－合成樹脂複合体が残るが、問題はない。

## 【0091】

## 【実施例】

本発明を以下の実施例によりさらに詳細に説明するが、本発明はそれらに限定されるものではない。

## 【0092】

実施例1

1 質量%のメチルセルロースを含有する水溶液20 gに、平均粒径30  $\mu\text{m}$ のリン酸カルシウム粉体10 gを加え、所定のスピードかつ時間で混練した。得られた発泡スラリーを成型型枠内に流し込み成形し、80℃で72時間乾燥後1200℃の大気炉で4時間焼成した。更に機械加工により、気孔率45%、直径20 mm×厚さ4 mmの外形のリン酸カルシウムブロック300（カルシウム／リンのモル比1.67）を作製した。

## 【0093】

1200℃の大気炉で焼成した10.0 gの多孔質リン酸カルシウム粒子100（粒径0.2～0.6 mm、カルシウム／リンのモル比1.67）、4.0 gの架橋アクリル粉体I〔平均粒径3.0  $\mu\text{m}$ 、ケミスノーMX-300、綜研化学（株）製〕、及び1.0 gの非架橋アクリル粉体II〔平均粒径1.5  $\mu\text{m}$ 、ケミスノーMP-1400、綜研化学（株）製〕を混合した。

## 【0094】

図1に示す構造のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体を得るために、円形板状のステンレススチール製部材200（直径20 mm×厚さ8 mm）と、多孔質リン酸カルシウム粒子100と、合成樹脂粒子Iと、合成樹脂粒子IIとの混合物2.2 gと

、円形板状の多孔質リン酸カルシウムブロック300（直径20 mm×厚さ4 mm）とを図16～18に示す加圧加熱装置の成形型（内径20 mm×高さ50 mm）に充填した。成形型中の混合物を上下から10 MPaの圧力で加圧しながら、240℃の加熱温度に10分間保持した。その後冷却し、室温で加圧を開放した。

#### 【0 0 9 5】

得られたリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体を旋盤を用いて加工し、直径20 mm、厚さ15.7 mmの複合体を得た。この複合体のリン酸カルシウム－合成樹脂複合層3aの表面を走査型電子顕微鏡で観察した結果、リン酸カルシウムがアクリル樹脂に覆われることなく表面に良好に露出していた。

#### 【0 0 9 6】

#### 実施例 2

図2に示す構造のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体を得るために、メチルセルロース水溶液とリン酸カルシウム粉体との混合物を混練するスピードと時間を変更した以外実施例1と同様にして焼結体を得た後、機械加工を施すことにより、気孔率30%、外径20 mm、内径16 mm及び厚さ15 mmの外形のリン酸カルシウムブロック300（カルシウム／リンのモル比1.67）を作製した。

#### 【0 0 9 7】

得られた円筒状多孔質リン酸カルシウムブロック300と、円柱状のステンレススチール部材200（直径10 mm×厚さ15 mm）と、実施例1と同様にして得られた多孔質リン酸カルシウム粒子と、合成樹脂粒子Iと、合成樹脂粒子IIとの混合物3.40 gとを、図16～18に示す加圧加熱装置の成形型（内径20 mm×高さ50 mm）に充填した。成形型中の混合物を上下から5 MPaの圧力で加圧しながら、200℃の加熱温度に5分間保持した。その後冷却し、室温で加圧を開放した。

#### 【0 0 9 8】

得られたリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体を旋盤を用いて加工し、直径20 mm、厚さ15 mmの複合体を得た。この複合体のリン酸カルシウム－合成樹脂複合層3aの表面を走査型電子顕微鏡で観察した結果、リン酸カルシウムがアクリル樹脂に覆われることなく表面に良好に露出していた。

#### 【0 0 9 9】

### 実施例 3

図 9 に示す構造のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体を得るために、円筒状ステンレススチール部材200（外径15 mm、内径10 mm、厚さ10 mm）と、実施例 1 と同様にして得られた多孔質リン酸カルシウム粒子と、合成樹脂粒子Iと、合成樹脂粒子IIとの混合物1.40 gとを図16～18に示す加圧加熱装置の成形型（内径15 mm×高さ30 mm）に充填した。成形型中の混合物を上下から10 MPaの圧力で加圧しながら、180℃の加熱温度に10分間保持した。その後冷却し、室温で加圧を開放した。

#### 【0 1 0 0】

円筒状ステンレススチール部材200の上面に付着したリン酸カルシウム－合成樹脂複合層3aを機械加工により除去し、複合体を得た。走査型電子顕微鏡による観察の結果、リン酸カルシウムがアクリル樹脂に覆われることなく表面に良好に露出していた。

#### 【0 1 0 1】

### 実施例 4

生体材料として用いられる骨接合用ネジを作製するために、図15に示すステンレススチール製ネジ本体200（ネジ部201の根元の外径6.0 mm、全長30.0 mm、胴部202の外径3.0 mm、頭部203の外径7.0 mm）に、図23に示すようにキャップ210（外径7.0 mm、全長10.0 mm）を装着した。キャップ210を装着したネジ本体200を下パンチ4bの半円筒状キャビティ14b（長さ32.0 mm×半径3.5 mm）に載置した後、下パンチ4bを上昇させ、ネジ本体200を加圧加熱装置の固定型 2 内の中央付近に固定した。図27に示す状態で保護型12を下降させてキャップ210に当接させ、次いで実施例 1 と同じ多孔質リン酸カルシウム粒子と、合成樹脂粒子Iと、合成樹脂粒子IIとの混合物1.30 gを下パンチ4bのキャビティ14b及び保護型12のキャビティ12a内に充填した。

#### 【0 1 0 2】

図28に示すように、上パンチ4aを圧下し、充填した混合物を10 MPaの圧力で加圧しながら、200℃の加熱温度に10分間保持した。その後冷却し、上下パンチを固定型 2 の外まで移動し、保護型12を取り外した後、成形体を取り出した。

## 【0103】

図30に示すように、キャップ210を脱離した後、図31に示すようにリン酸カルシウム-合成樹脂複合層3aを機械加工によりネジ状に加工し、図15に示す複合体を得た。この複合体のリン酸カルシウム-合成樹脂複合層3aの表面を、走査型電子顕微鏡で観察した結果、リン酸カルシウムがアクリル樹脂に覆われることなく表面に良好に露出していた。

## 【0104】

実施例 5

## (1) 混合物の調製

1200℃の大気炉で焼成した多孔質リン酸カルシウム粒子100（平均粒径0.2～0.6 mm、カルシウム／リンのモル比1.67）10 gと、架橋アクリル粉体I〔平均粒径3 μm、ケミスノーMX-300、綜研化学（株）製〕4 gと、非架橋アクリル粉体II（平均粒径1.5 μm、ケミスノーMP-1400、綜研化学（株）製）1 gとを混合した。

## 【0105】

## (2) 成型型への充填

図20に示すように加圧加熱装置の固定型2のキャビティ2a（24 mm×14 mm、高さ50 mm）内に、(1)で作製した混合物3を高さ約7 mmとなるまで入れた後で、図12に示す構造のチタン製部材200（20.0 mm×10.0 mm、高さ15 mm、窓5.0 mm×8.0 mm、厚さ2.0 mm）を入れ、チタン製部材200の内側と外側に残りの混合物3を入れて、チタン製部材200が混合物3に埋もれた状態とした。

## 【0106】

## (3) 加圧加熱処理

キャビティ2a内を上下から10 MPaの圧力で加圧しながら、温度を200℃にして5分間保持した後、室温まで冷却し、加圧を開放した。得られた充填複合体400の金属部材200の中には、リン酸カルシウム-合成樹脂複合体が隙間無く充填していた。充填複合体400のリン酸カルシウム-合成樹脂複合体をフライス盤、マシニングセンターを用いて加工して厚さ約1 mmのリン酸カルシウム-合成樹脂複合層3aとし、図13及び図14に示すリン酸カルシウム-合成樹脂-金属複合体（外径22.0 mm×12.0 mm、高さ17 mm、窓3.0 mm×6.0 mm、厚さ4.0 mm）を得た。こ

の複合体のリン酸カルシウム－合成樹脂複合層3aの表面を走査型電子顕微鏡で観察したところ、リン酸カルシウムがアクリル樹脂に覆われることなく表面に良好に露出していた。

#### 【0107】

##### 実施例 6

##### (1) 混合物の調製

700℃の大気炉で焼成した多孔質リン酸カルシウム粒子100（平均粒径0.1～0.3 mm、カルシウム／リンのモル比1.50）6 gと、架橋アクリル粉体I〔平均粒径3 μm、ケミスノーMX-300、綜研化学（株）製〕6 gと、非架橋アクリル粉体II（平均粒径1.5 μm、ケミスノーMP-1400、綜研化学（株）製）0.5 gとからなる混合物を調製した。

#### 【0108】

##### (2) 成型型への充填

加圧加熱装置の固定型2のキャビティ2a（30 mm×40 mm、高さ30 mm）内に、(1)で作製した混合物3を高さ約6 mmとなるまで入れた後で、チタン製の網（線径1.0 mm、8 メッシュ、25.0 mm×35.0 mm）を入れ、その上に残りの混合物3を入れた。

#### 【0109】

##### (3) 加圧加熱処理

キャビティ2a内を上下から10 MPaの圧力で加圧しながら、温度を200℃にして5分間保持した。その後冷却し、室温で加圧を開放した。リン酸カルシウム－合成樹脂複合体をフライス盤を用いて加工して厚さ約1 mmのリン酸カルシウム－合成樹脂複合層3aとし、図10に示すリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体（27.0 mm×37.0 mm、厚さ2.5 mm）を得た。この複合体のリン酸カルシウム－合成樹脂複合層3aの表面を走査型電子顕微鏡で観察したところ、リン酸カルシウムがアクリル樹脂に覆われることなく表面に良好に露出していた。オートクレーブを使用して、この複合体を121℃で20分間滅菌処理した。このリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体の三点曲げ強度は77.6 MPaであった。

#### 【0110】

### 比較例 1

チタン製網を使用しない以外実施例 6 と同様にして、リン酸カルシウム－合成樹脂複合体を作製した。この複合体の三点曲げ強度は、25.5 MPaであった。

【0 1 1 1】

#### 【発明の効果】

上記の通り、本発明のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体は、生体適合性に優れたリン酸カルシウム粒子（又はリン酸カルシウム粒子及び／又はリン酸カルシウムブロック）が表面の少なくとも一部に露出しているとともに、強度に優れた金属部材を有することにより、高い生体適合性及び機械的強度を有する。かかる構造を有する本発明のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体は、優れた加工性、生体適合性、耐水性及び耐衝撃性を有し、人口歯根や骨補強材等の用途に好適である。

#### 【図面の簡単な説明】

【図 1】 本発明のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体の一例を示す図であり、(a)は上面図であり、(b)は側面図である。

【図 2】 本発明のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体の別の例を示す図であり、(a)は上面図であり、(b)は中央縦断面図である。

【図 3】 本発明のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体のさらに別の例を示す図であり、(a)は上面図であり、(b)は中央縦断面図である。

【図 4】 本発明のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体のさらに別の例を示す図であり、(a)は上面図であり、(b)は中央縦断面図である。

【図 5】 本発明のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体のさらに別の例を示す図であり、(a)は上面図であり、(b)は中央縦断面図である。

【図 6】 本発明のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体のさらに別の例を示す図であり、(a)は上面図であり、(b)は中央縦断面図である。

【図 7】 本発明のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体のさらに別の例を示す図であり、(a)は上面図であり、(b)は中央縦断面図である。

【図 8】 本発明のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体のさらに別の例を示す図であり、(a)は上面図であり、(b)は中央縦断面図である。

【図 9】 本発明のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体のさらに別の例を示す図であり、(a)は上面図であり、(b)は中央縦断面図である。

【図10】 本発明のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体のさらに別の例を示す図であり、(a)は斜視図であり、(b)は部分拡大断面図である。

【図11】 本発明のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体のさらに別の例を示す図であり、(a)は斜視図であり、(b)は部分拡大断面図である。

【図12】 金属部材の一例を示す斜視図である。

【図13】 図12に示す金属部材を具備するリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体を示す斜視図である。

【図14】 図13に示すリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体を示す図であり、(a)は側面図であり、(b)はそのA-A断面図であり、(c)はそのB-B断面図である。

【図15】 本発明のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体のさらに別の例を示す図であり、(a)は側面図であり、(b)は断面図である。

【図16】 真空加圧加熱装置の構成を示す概略図である。

【図17】 図16に示す真空加圧加熱装置の成型型を示す分解断面図である。

【図18】 図17に示す成型型に金属部材、混合物及びリン酸カルシウムブロックを充填した状態を示す縦断面図である。

【図19】 板状のリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体を製造する工程を示す図であり、(a)は真空加圧加熱装置の成型型に筒状の金属部材と混合物とを入れる様子を示し、(b)は成型型に金属部材と混合物を充填した状態で加圧加熱する様子を示す。

【図20】 充填複合体を製造する工程を示す図であり、(a)は真空加圧加熱装置の成型型に筒状の金属部材と混合物とを入れる様子を示し、(b)は成型型に金属部材と混合物を充填した状態で加圧加熱する様子を示す。

【図21】 筒状の金属部材を内包する充填複合体を示す斜視図である。

【図22】 図21に示す充填複合体を示す図であり、(a)は側面図であり、(b)はそのC-C断面図であり、(c)はそのD-D断面図である。

【図23】 図15の複合体を製造するために、金属製ネジにキャップを装着する工

程を示す断面図である。

【図24】 図15のネジ状複合体を製造するための真空加圧加熱装置の成形部を示す縦断面図である。

【図25】 図24に示す真空加圧加熱装置のE-E断面図である。

【図26】 図24に示す真空加圧加熱装置の保護型を示す図であり、(a)は上面図であり、(b)はそのF-F断面図であり、(c)はそのG-G断面図であり、(d)はそのH-H断面図であり、(e)はそのJ-J断面図である。

【図27】 キャップを装着したネジを真空加圧加熱装置の成形型に載置した状態で混合物を充填する様子を示す縦断面図である。

【図28】 キャップを装着したネジを固定した状態で混合物を加圧加熱する様子を示す図であり、(a)は縦断面図であり、(b)はそのK-K断面図である。

【図29】 加圧加熱後、成形体を成形型から取り出す様子を示す縦断面図である。

【図30】 成形体からキャップを除去する様子を示す断面図である。

【図31】 キャップを除去した成形体をネジ加工する様子を示す断面図である。

【符号の説明】

I・・・合成樹脂粒子I

II・・・合成樹脂粒子II

100・・・リン酸カルシウム粒子

200・・・金属部材

201・・・ネジ部

202・・・ネジ胴部

203・・・ネジ頭部

203a・・・ネジ頭部のプラス又はマイナスの溝

210・・・金属製キャップ

210a・・・金属製キャップの開口面

221・・・窓

222・・・上端

223・・・下端

230 . . . 貫通孔

300 . . . リン酸カルシウムブロック

400 . . . 充填複合体

1 . . . 加圧加熱装置

2 . . . 固定型

2a . . . 固定型のキャビティ

3 . . . リン酸カルシウム粒子と合成樹脂粒子I及びIIとの混合物

31 . . . 開口部

3a . . . リン酸カルシウム－合成樹脂複合層

4a . . . 上パンチ

4b . . . 下パンチ

5a、5b . . . ラム

6 . . . 真空チャンバ

7 . . . 真空ポンプ

8 . . . 電源

9 . . . 加圧駆動機構

10 . . . 制御部

11 . . . ガスポンプ

12 . . . 保護型

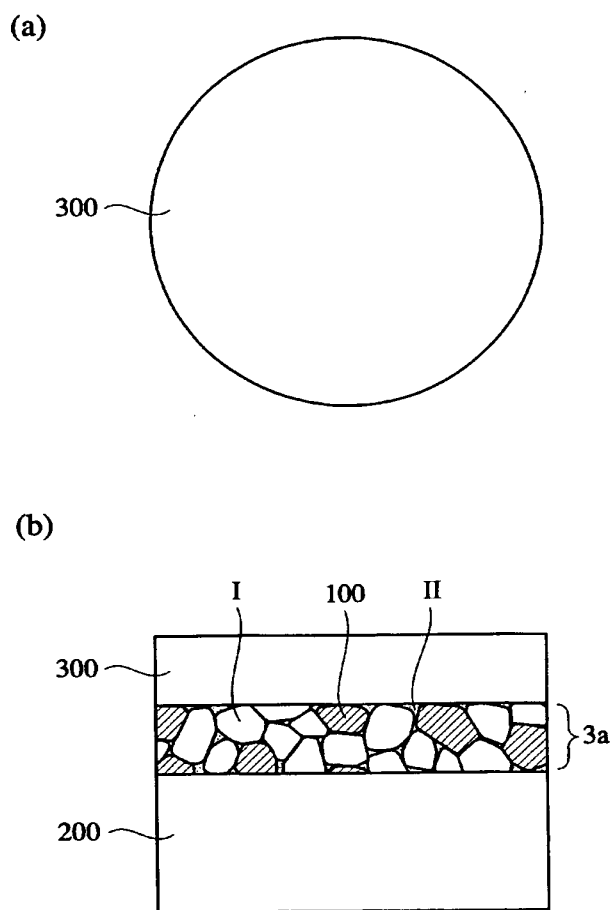
12a、12b、12c . . . 保護型のキャビティ

14a、14b . . . 上下パンチのキャビティ

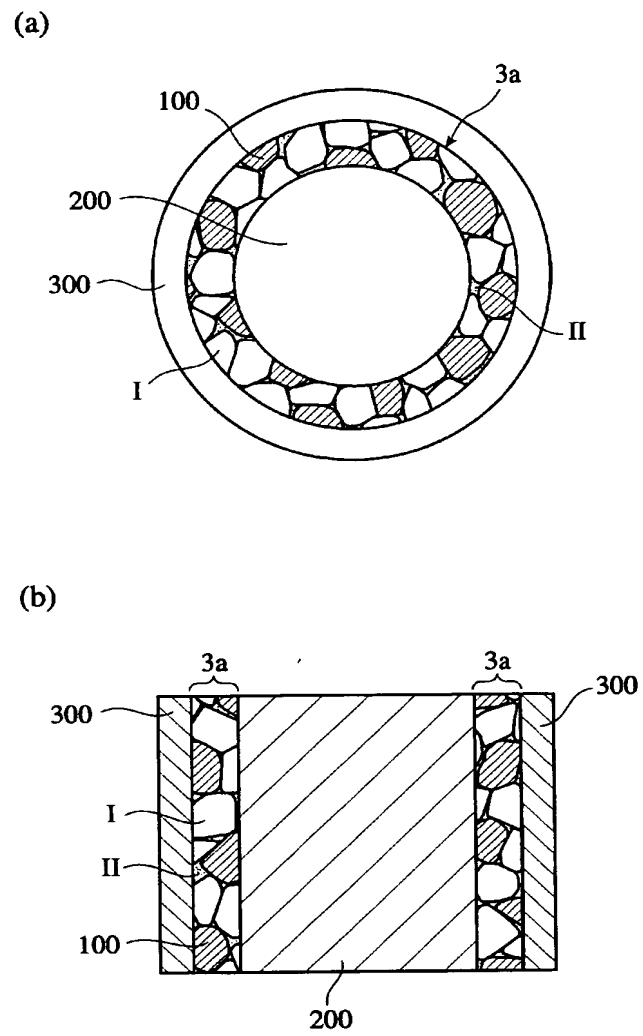
【書類名】

図面

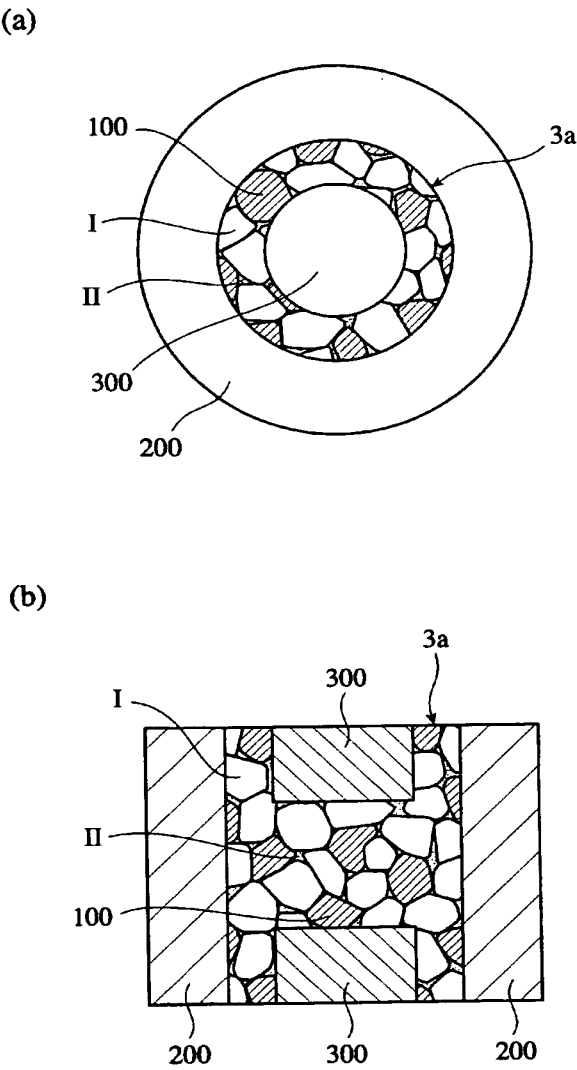
【図 1】



【図 2】

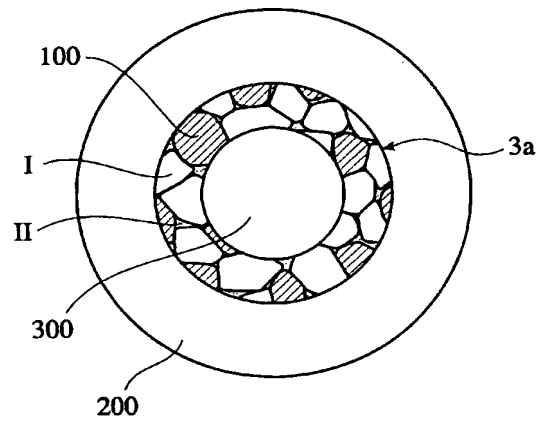


【図 3】

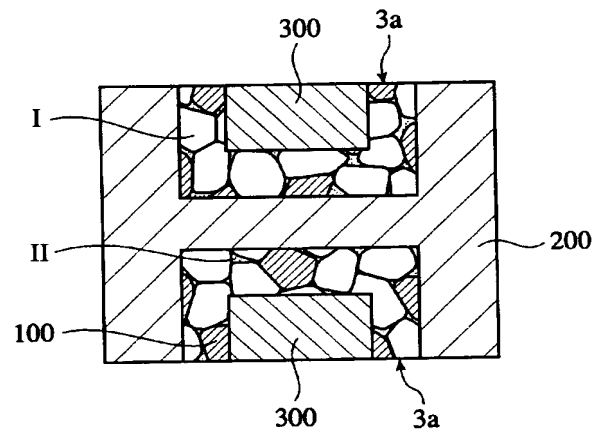


【図 4】

(a)

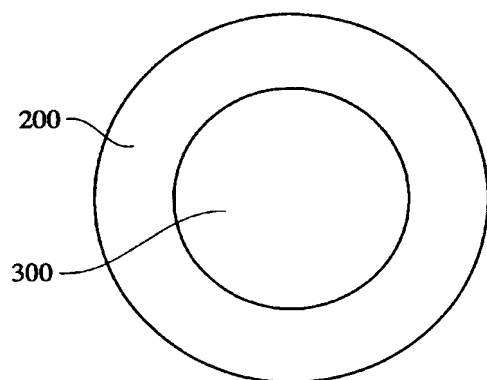


(b)

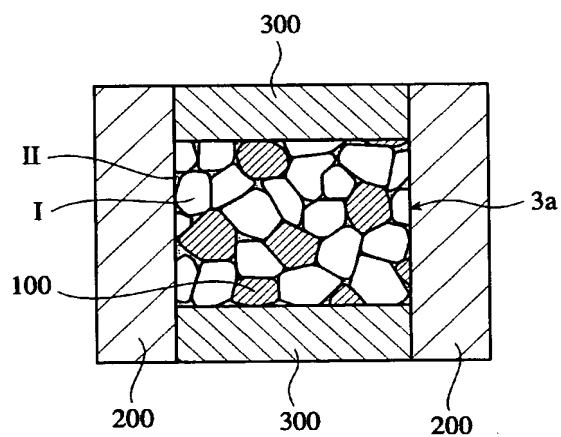


【図 5】

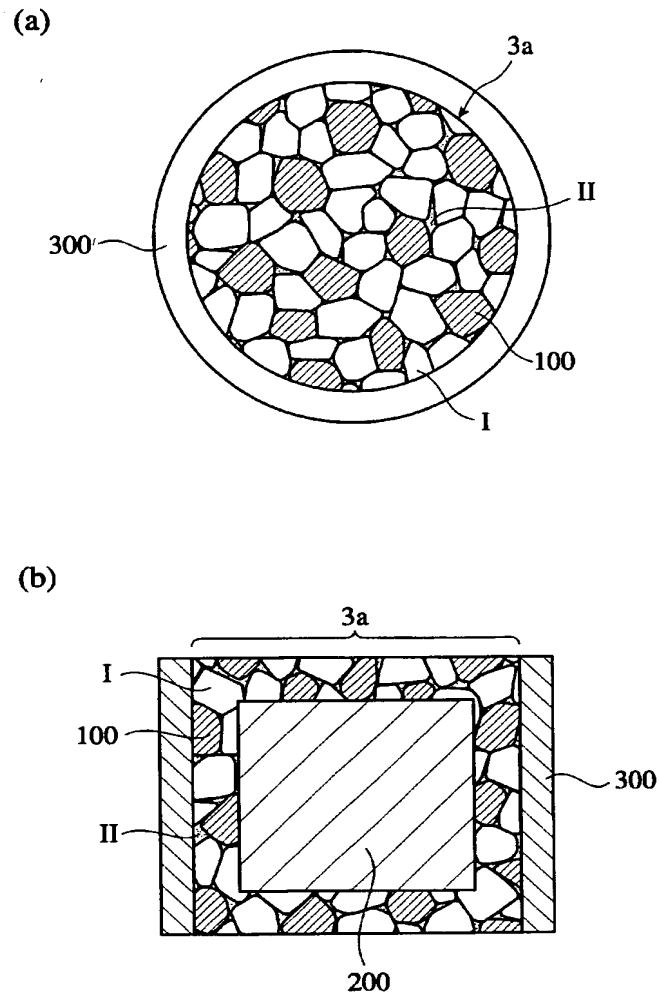
(a)



(b)

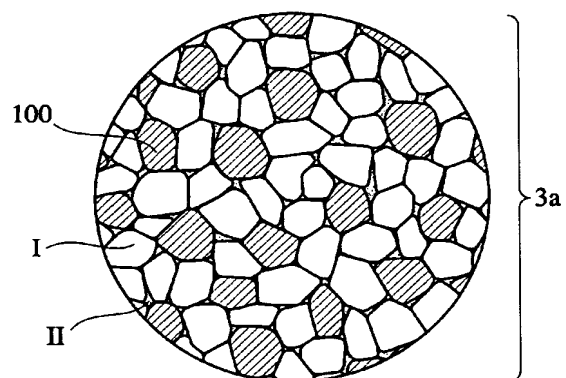


【図 6】

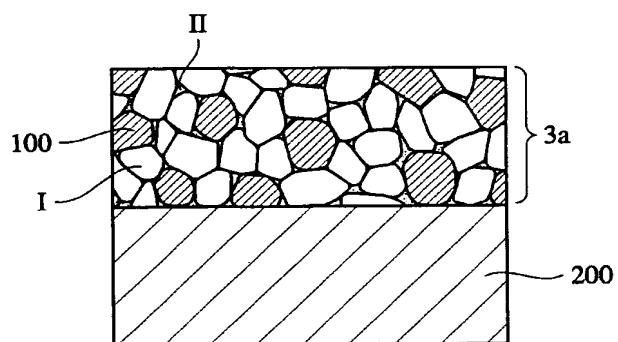


【図 7】

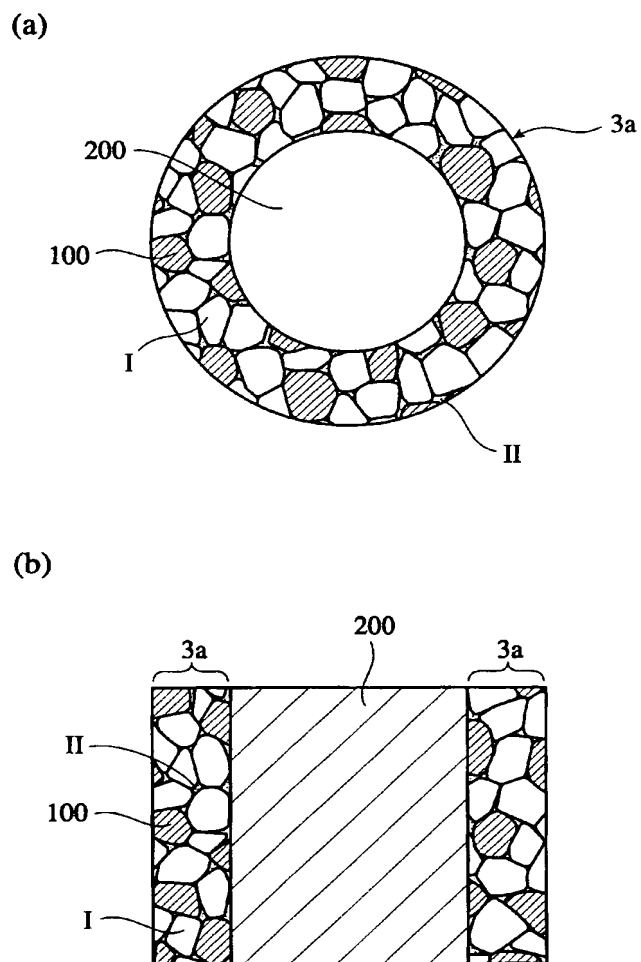
(a)



(b)

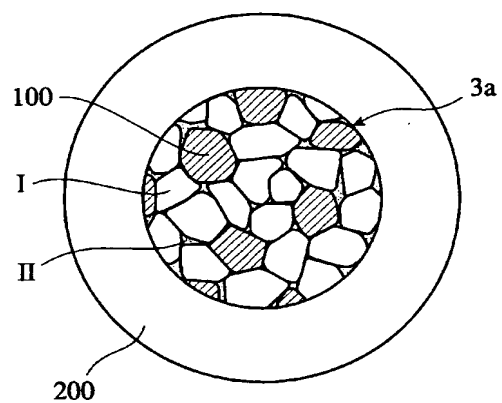


【図 8】

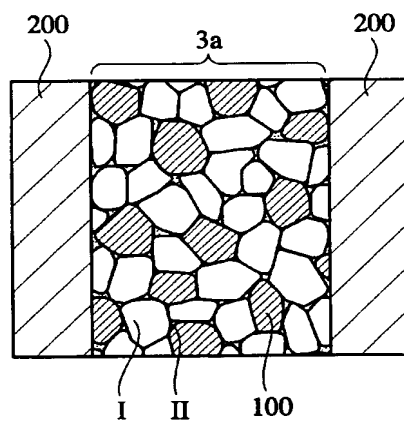


【図 9】

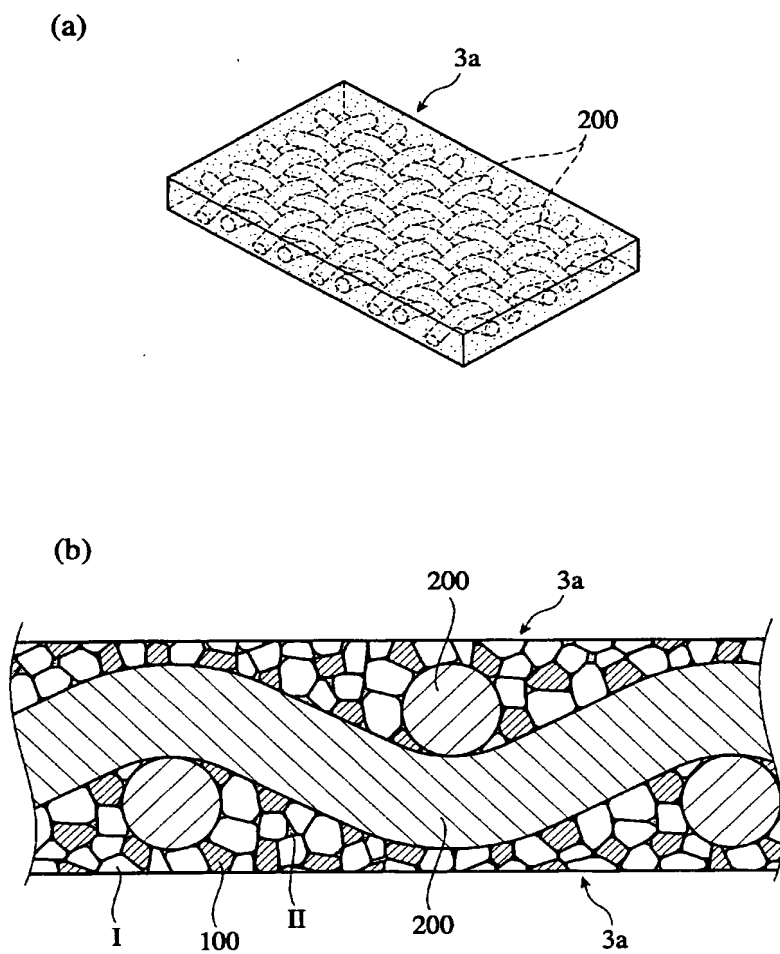
(a)



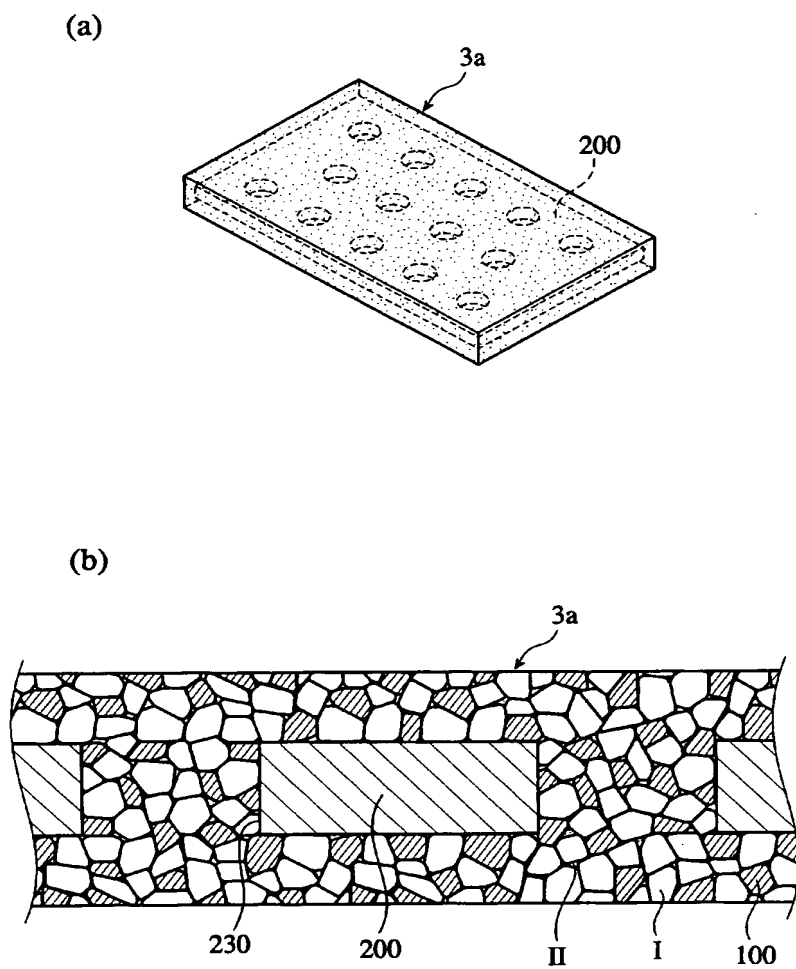
(b)



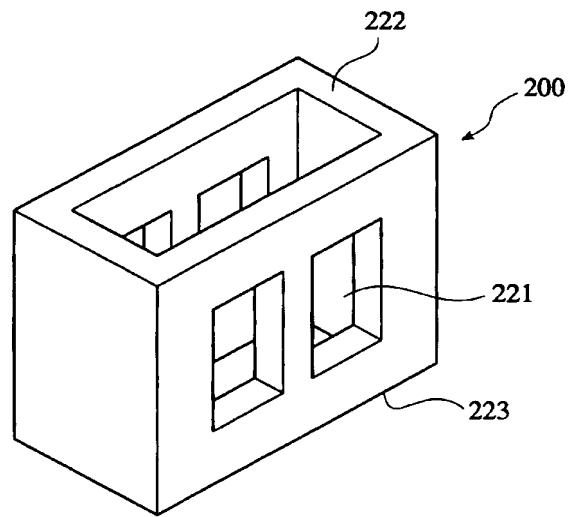
【図 10】



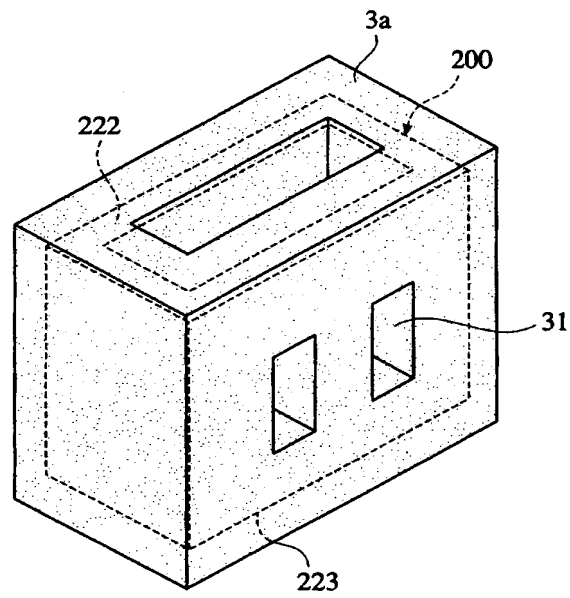
【図 11】



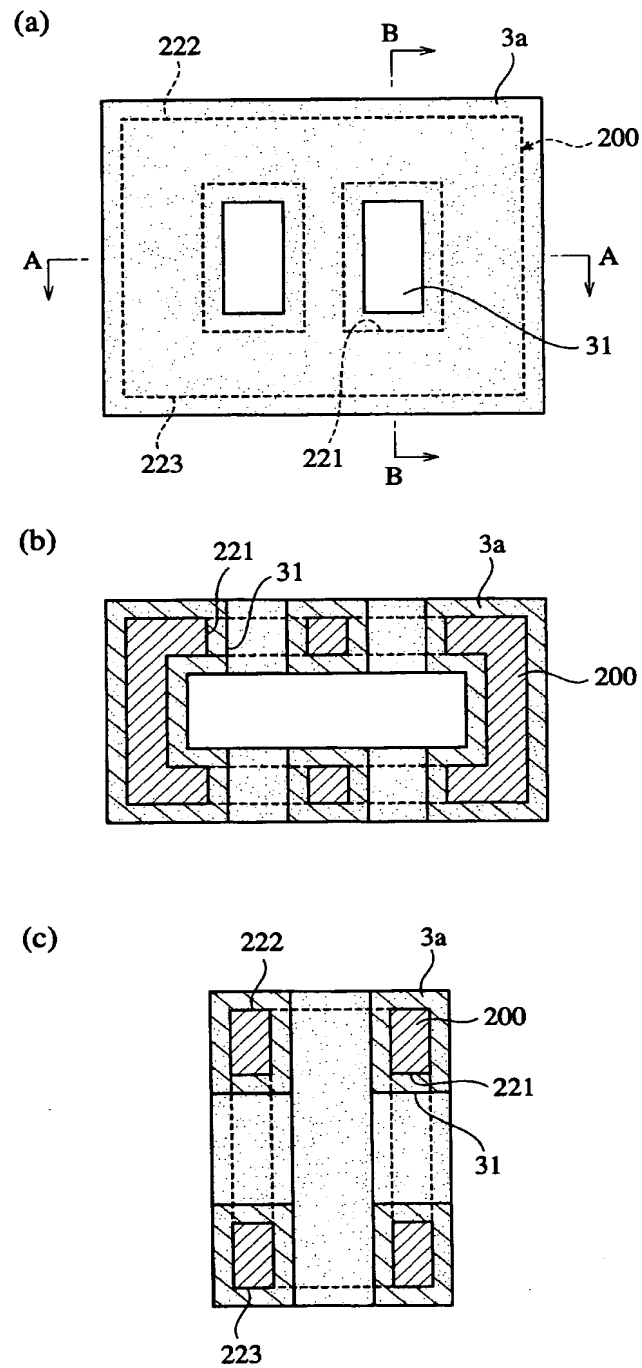
【図 1 2】



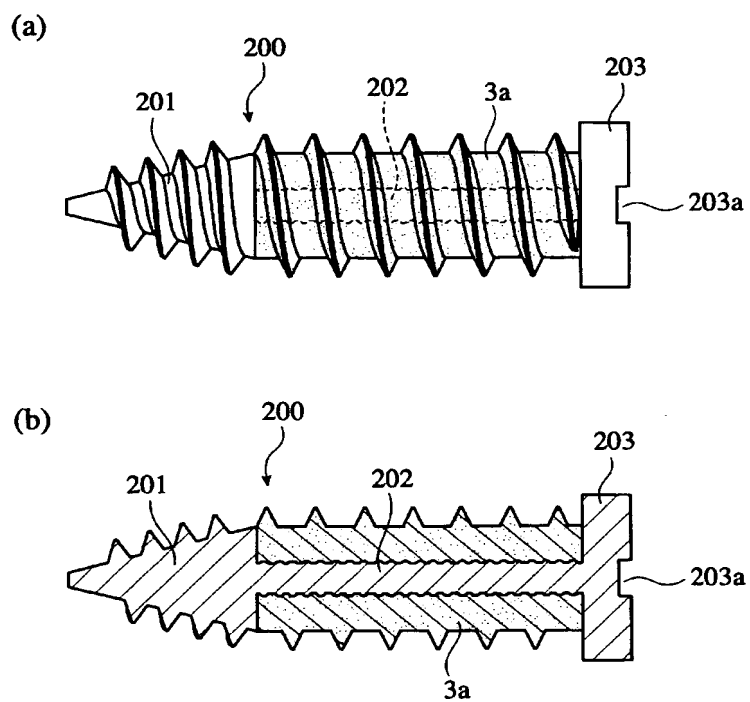
【図 1 3】



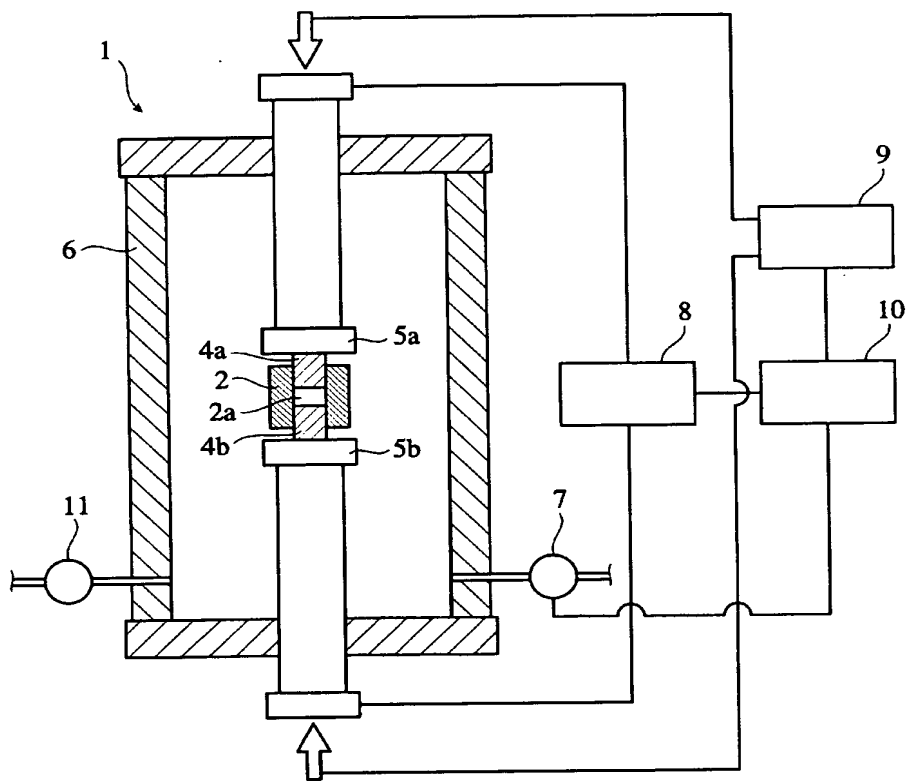
【図 14】



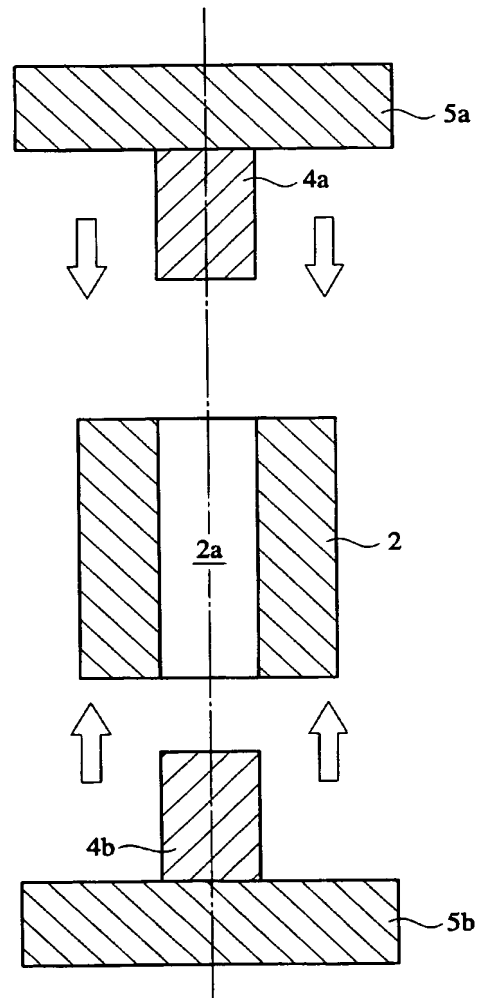
【図 1 5】



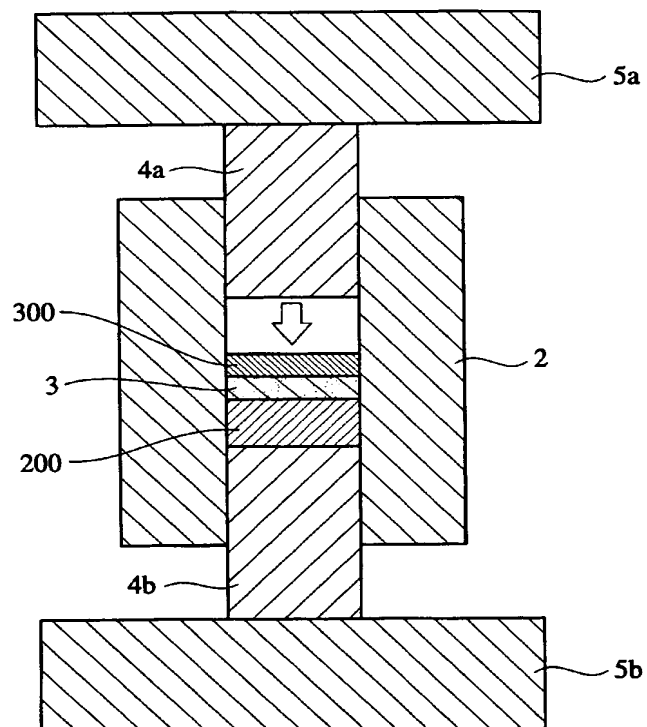
【図 16】



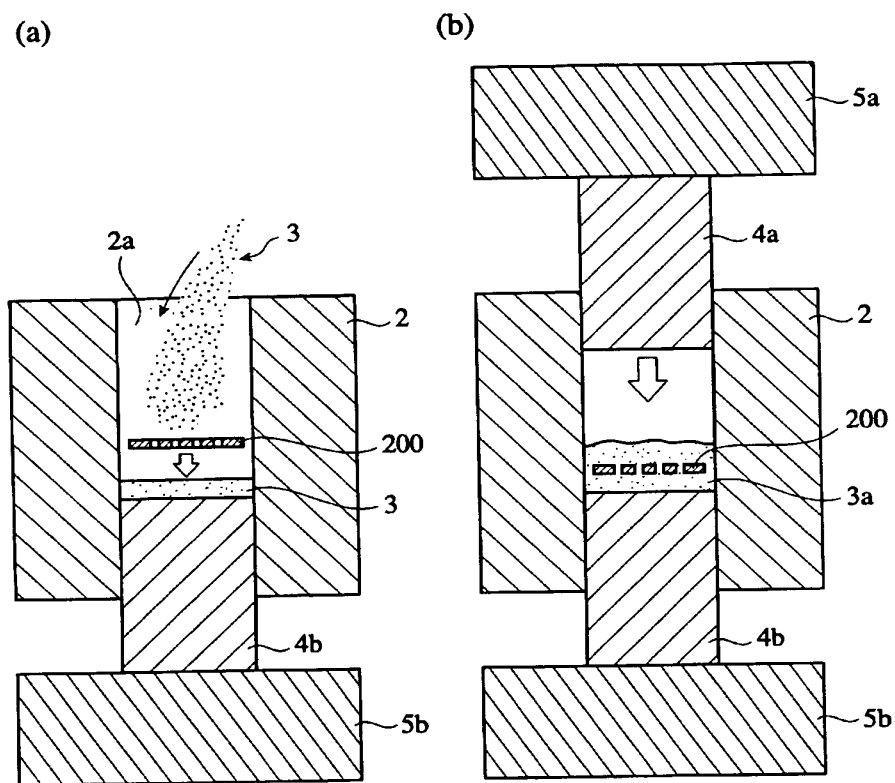
【図 17】



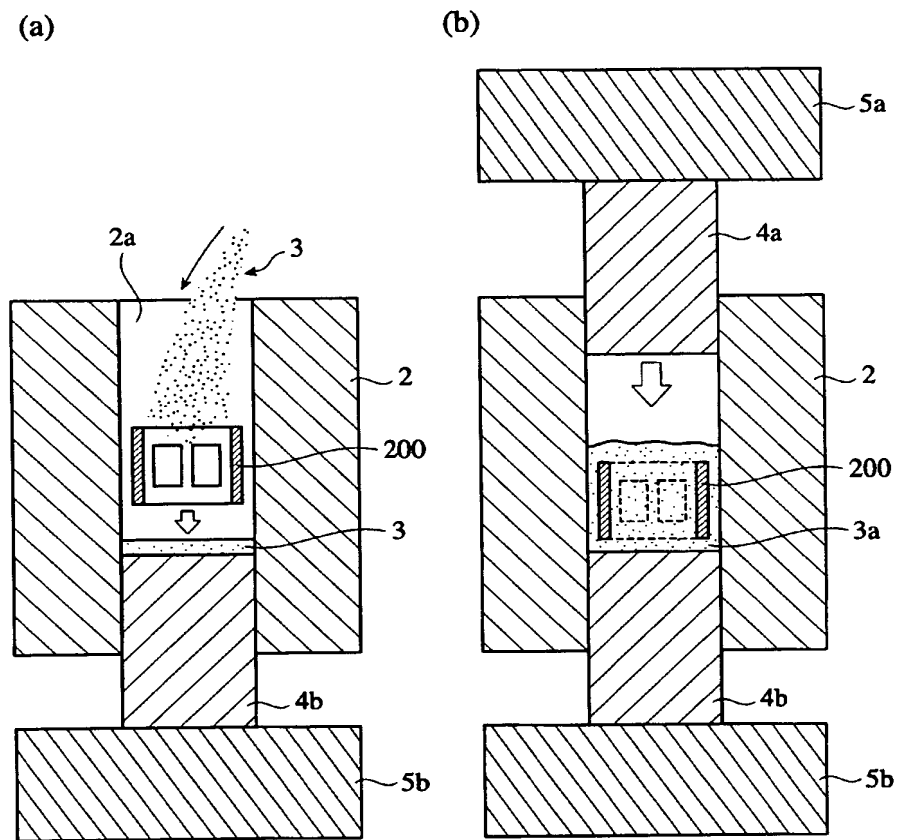
【図 18】



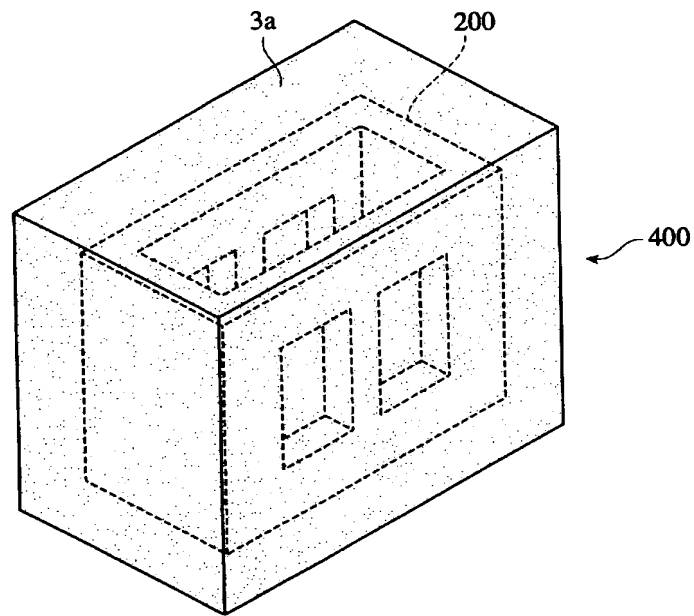
【図 19】



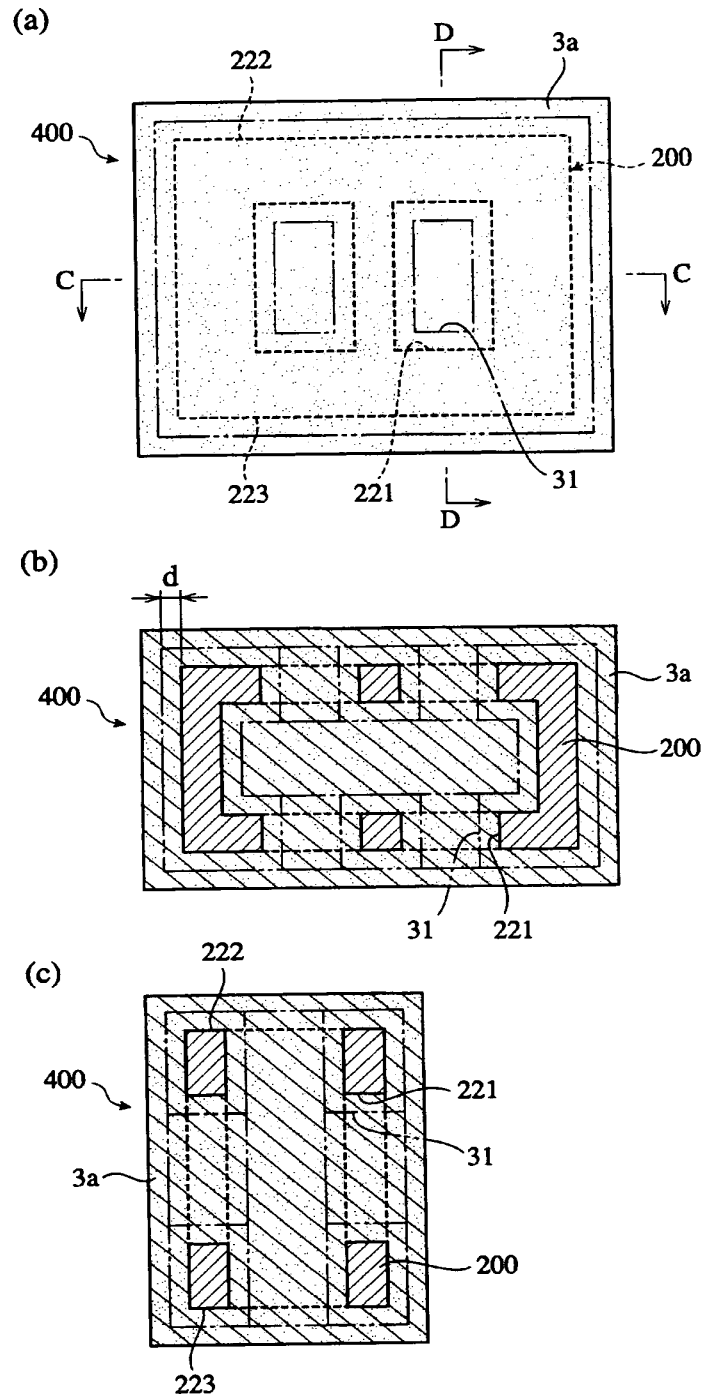
【図 20】



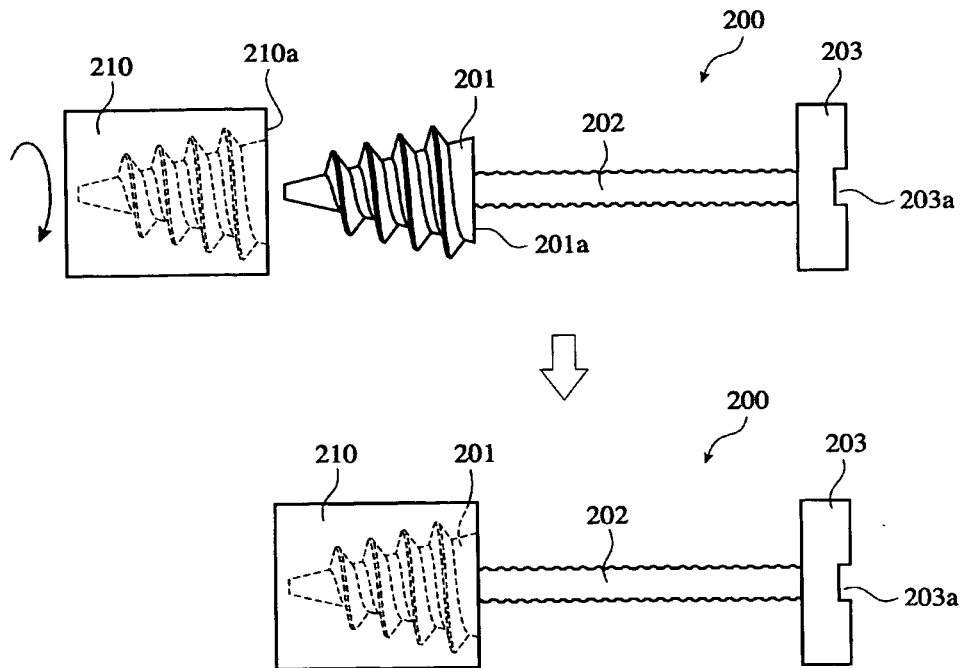
【図 21】



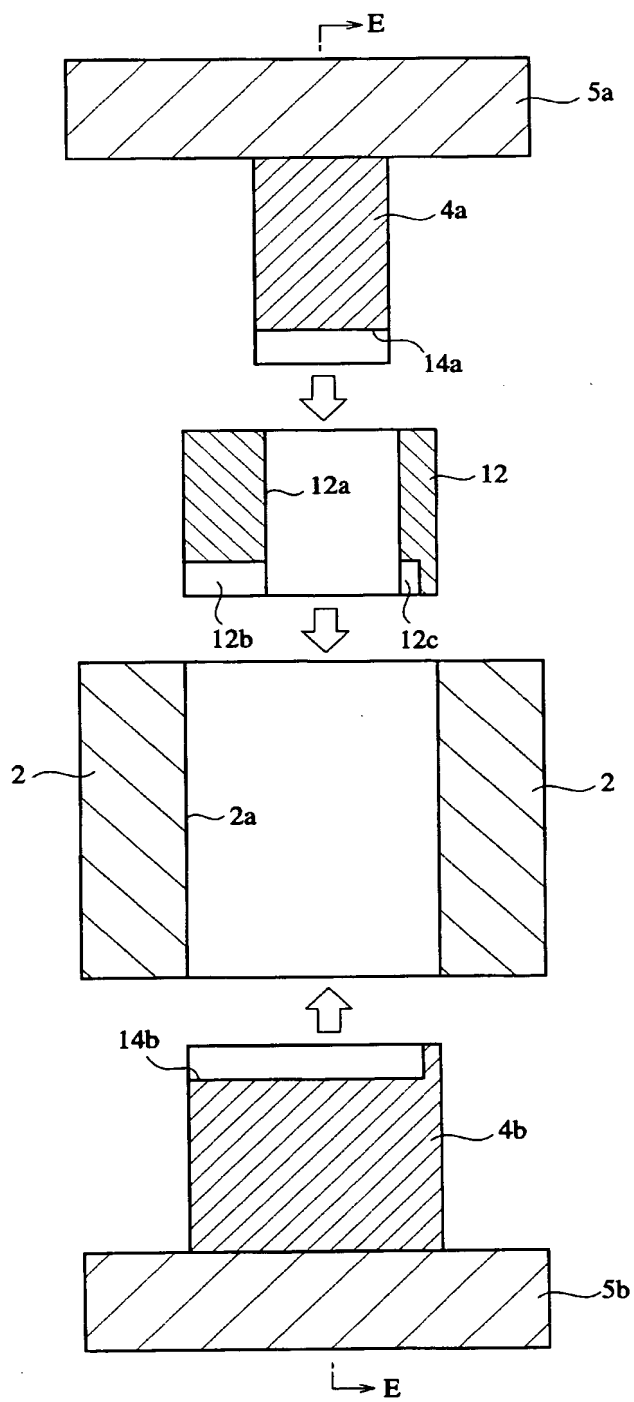
【図 22】



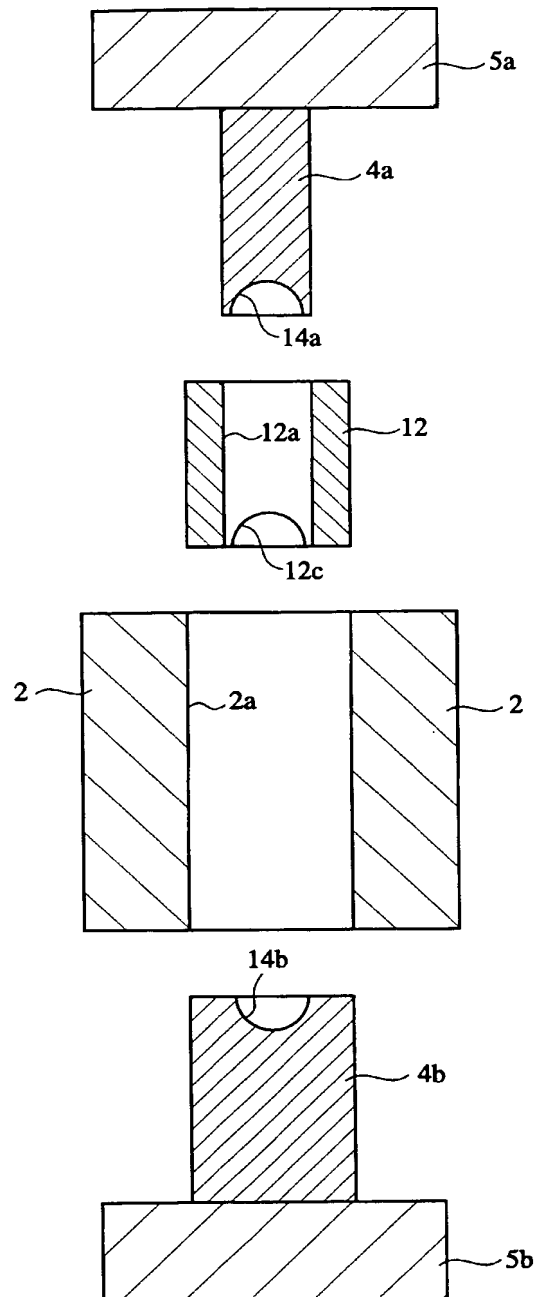
【図 23】



【図 24】

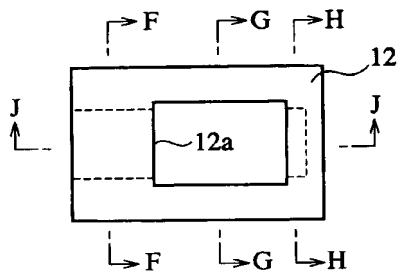


【図 25】

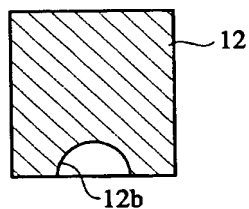


【図 26】

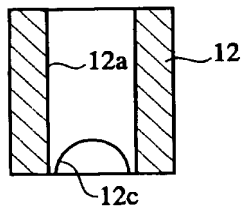
(a) 保護型12の上面



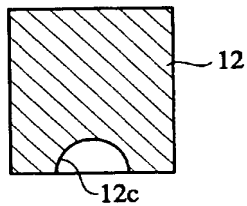
(b) F-F断面



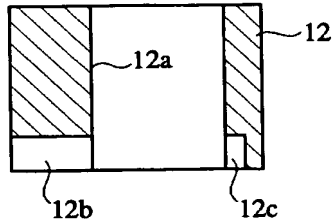
(c) G-G断面



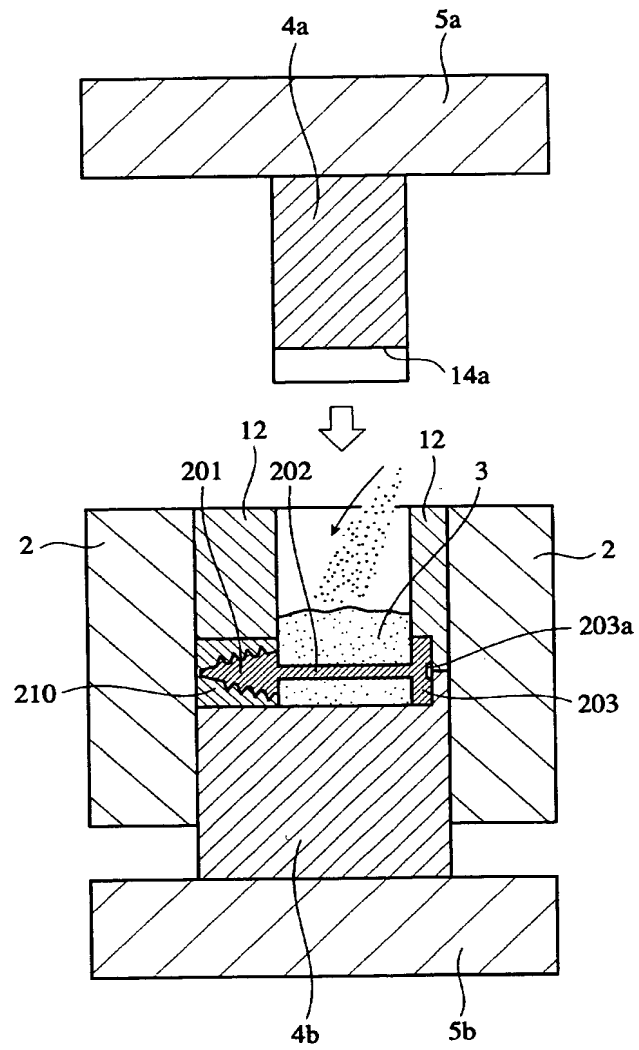
(d) H-H断面



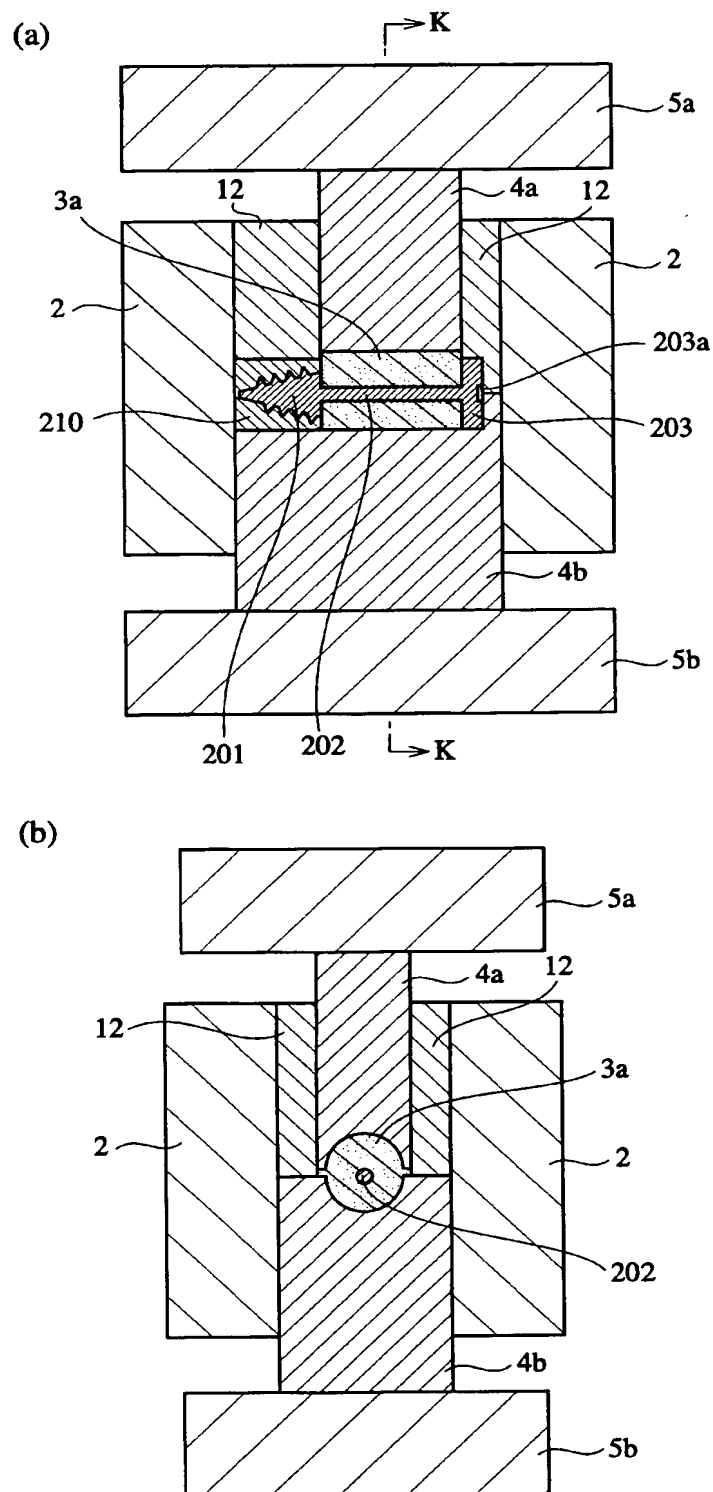
(e) J-J断面



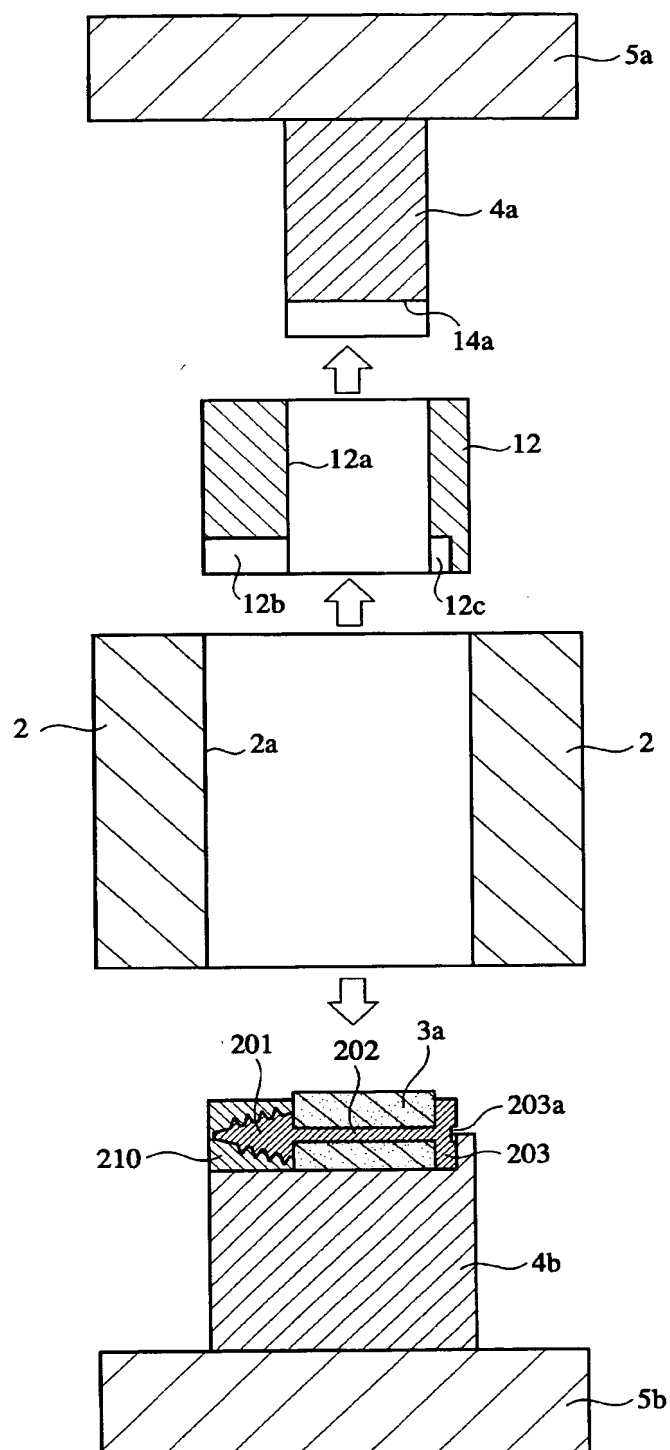
【図 27】



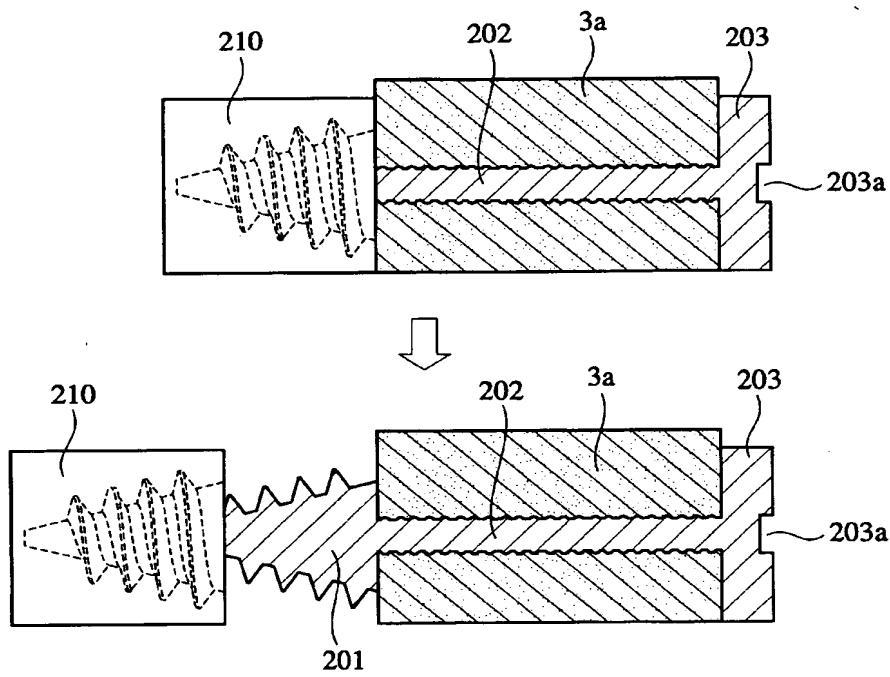
【図 28】



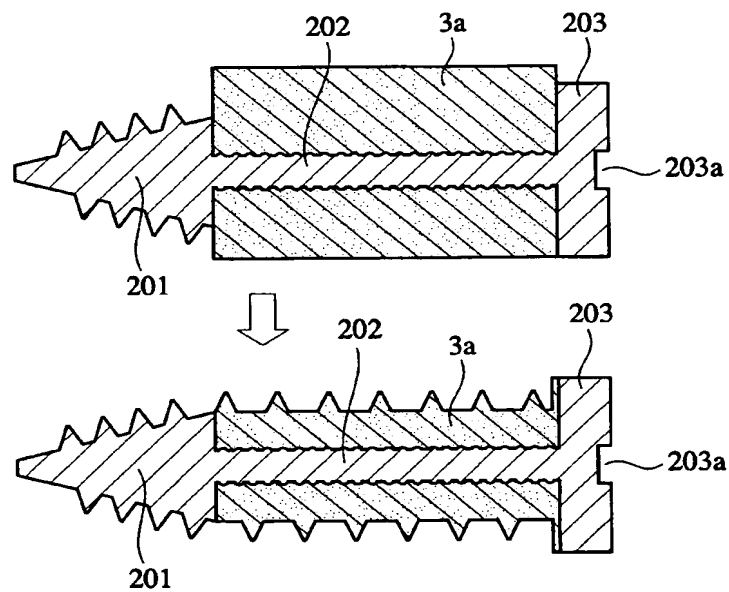
【図 29】



【図 30】



【図 31】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 優れた加工性、生体適合性及び耐水性を有するとともに、衝撃に強いリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体、及びその製造方法を提供する。

【解決手段】 リン酸カルシウム粒子100、予め少なくとも部分的に架橋されている合成樹脂粒子I及び架橋されていない合成樹脂粒子IIの混合物3と、金属材料200と、リン酸カルシウムブロック300とを加圧加熱処理してなるリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体において、複合体の表面の少なくとも一部にリン酸カルシウム粒子100及び／又はリン酸カルシウムブロック300が露出しているリン酸カルシウム－合成樹脂－金属複合体及びその製造方法。

【選択図】 図 1

特願 2 0 0 3 - 1 7 6 7 4 7

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[ 0 0 0 0 0 0 5 2 7 ]

1 . 変更年月日

1 9 9 0 年 8 月 1 0 日

[変更理由]

新規登録

住 所

東京都板橋区前野町 2 丁目 3 6 番 9 号

氏 名

旭光学工業株式会社

2 . 変更年月日

2 0 0 2 年 1 0 月 1 日

[変更理由]

名称変更

住 所

東京都板橋区前野町 2 丁目 3 6 番 9 号

氏 名

ペンタックス株式会社